

**PCT**WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

<b>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>7</sup> :</b> <b>C08G 18/79, 18/22</b>	<b>A1</b>	<b>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/34355</b> <b>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:</b> 15. Juni 2000 (15.06.00)
<b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/EP99/09465 <b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 3. Dezember 1999 (03.12.99)  <b>(30) Prioritätsdaten:</b> 198 56 878.9      10. Dezember 1998 (10.12.98)    DE  <b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):</b> INSTITUT FÜR POLYMERFORSCHUNG DRESDEN E.V. [DE/DE]; (Frau Mildner), Hohe Strasse 6, D-01069 Dresden (DE).  <b>(72) Erfinder; und</b> <b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):</b> LEHMANN, Frank [DE/DE]; Görlitzer Strasse 37, D-01099 Dresden (DE). GEDAN-SMOLKA, Michaela [DE/DE]; Ponikauer Strasse 1, D-01990 Ortrand (DE). LEHMANN, Dieter [DE/DE]; Elsa-Brandström-Weg 7, D-01646 Coswig (DE).  <b>(74) Anwalt:</b> RAUSCHENBACH, Marion; Postfach 27 01 75, D-01172 Dresden (DE).	<b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).  <b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i>	
<b>(54) Title:</b> HARDENABLE MATERIALS WHICH CONTAIN URETDIONE GROUPS, METHOD FOR THE PRODUCTION AND PROCESSING THEREOF, AND THEIR UTILIZATION  <b>(54) Bezeichnung:</b> HÄRTBARE URETDIONGRUPPENHALTIGE MASSEN UND EIN VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG UND VERARBEITUNG SOWIE IHRE VERWENDUNG  <b>(57) Abstract</b> <p>The invention is used in the fields of chemistry and relates to hardenable materials which can be used for producing lacquers. The aim of the invention is to provide materials which harden at low temperatures in the same amount of time as the others. This is achieved by using hardenable materials containing uretdione groups and containing; (A) a binding agent constituent, whereby this component either (A1) does not contain carboxyl groups, or (A2) the concentration of carboxyl groups is less than that of the catalyst (C), or (A3), in the case of a high level of concentration, a quantity of a reactive agent is added. The hardenable materials also contain (B) a polyaddition compound which comprises uretdione groups, and (C) at least one Lewis acid catalyst. The aim of the invention is also achieved using a method for producing materials of this type in which the starting materials are homogenized in a solution and/or in a melt, the solution and/or melt is then rapidly cooled, and subsequent processing is carried out afterwards to effect a complete cross-linking.</p> <b>(57) Zusammenfassung</b> <p>Die Erfindung bezieht sich auf das Gebiet der Chemie und betrifft härtbare Massen, wie sie für die Herstellung von Lacken eingesetzt werden können. Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, Massen zur Verfügung zu stellen, die bei niedrigeren Temperaturen in gleicher Zeit aushärten. Die Aufgabe wird gelöst durch härtbare, uretdiongruppenhaltige Massen, enthaltend (A) eine Bindemittel-Komponente, wobei diese entweder (A1) frei von Carboxylgruppen ist, oder (A2) die Konzentration an Carboxylgruppen kleiner ist als die des Katalysators (C) oder (A3) bei einer höheren Konzentration eine Menge an reaktivem Agens zugegeben wird, und (B) eine Uretidiongruppen aufweisende Polyadditionsverbindung und (C) mindestens einen Lewisäure-Katalysator. Die Aufgabe wird weiterhin durch ein Verfahren zur Herstellung derartiger Massen gelöst, bei dem die Ausgangsstoffe in Lösung und/oder in Schmelze homogenisiert werden, danach die Lösung oder die Schmelze schnell abgekühlt wird und anschliessend die Weiterverarbeitung zur vollständigen Vernetzung durchgeführt wird.</p>		

# LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland			TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	NZ	Neuseeland		
CM	Kamerun			PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

## Härtbare uretdiongruppenhaltige Massen und ein Verfahren zu ihrer Herstellung und Verarbeitung sowie ihre Verwendung

Die Erfindung bezieht sich auf das Gebiet der Chemie und betrifft härtbare Massen, wie sie beispielsweise für die Herstellung von Lacken eingesetzt werden können und ein Verfahren zu ihrer Herstellung und Verarbeitung.

Die Blockierung von Isocyanaten mittels Dimerisierung zu Uretdionen stellt eine effektive Methode dar, Isocyanatgruppen vor vorzeitiger Reaktion zu schützen. Ein wichtiges Einsatzgebiet von uretdiongruppenhaltigen Härtern stellt die Beschichtung hitzeresistenter Substrate, speziell mit Pulverlacken, dar.

Pulverlacke sind frei von Lösemitteln und demzufolge weitgehend frei von schädlichen Emissionen und sie besitzen ein sehr hohes Lackieräquivalent. Die Pulverlackierung stellt somit ein sehr umweltfreundliches und wirtschaftliches Beschichtungsverfahren dar.

Beschichtungen auf Polyurethanbasis zeichnen sich durch besondere Licht- und Wetterbeständigkeit und hervorragende optische Eigenschaften aus. Die heute in der Praxis angewandten Polyurethanpulverlacke basieren auf festen Hydroxylgruppen tragenden Polyestern sowie festen aliphatischen bzw. cycloaliphatischen Polyisocyanaten, deren Isocyanatfunktionen durch externe, niedermolekulare Verkappungsmittel vor vorzeitiger Reaktion geschützt werden. Diese Verkappungsmittel entweichen zumindest teilweise während der thermischen Aushärtung des Pulverlackes. Diese Emissionen laufen der prinzipiellen Emissionsfreiheit von Pulverlackformulierungen entgegen und bedingen aus Gründen von Ökologie und Arbeitsplatzhygiene besondere Vorkehrungen.

Durch den Einsatz von uretdiongruppenhaltigen Vernetzern (z.B. DE 23 12 391 OS, EP 045 998 A1, EP 669 353 A1) besteht die Möglichkeit derartige Emissionen nie-

dermolekularer Substanzen zu vermeiden. Aufgrund der geringen Reaktivität der intern blockierten Isocyanatgruppen ist der Einsatz entsprechender uretdiongruppenhaltiger Härter bis zum heutigen Tag begrenzt, da die zur Aushärtung notwendigen Temperaturen größer 160°C zu hoch liegen und/oder die zur Aushärtung notwendige Zeit zu lang ist. Mit Blick auf die Kosten für Energie und die Möglichkeit thermolabile Substrate (z.B. Kunststoffe oder Holz) zu beschichten, ist es notwendig, die Reaktivität derartiger Systeme zu erhöhen.

Es wurden verschiedene Versuche unternommen, die Aushärtung von Polyurethan-Massen auf Basis von uretdiongruppenhaltigen Härtern durch den Einsatz von Katalysatoren zu beschleunigen. Es wurde eine Reihe von Verbindungen vorgeschlagen, wie die aus der Polyurethanchemie bekannten metallorganischen Katalysatoren, wie Zinn(II)-acetat, Zinn(II)-octoat, Zinn(II)-ethylcaproat, Zinn(II)-laurat, Dibutylzinndiacetat, Dibutylzinndilaurat, Dibutylzinnmaleat (z.B. EP 045 994 A1, EP 045 998 A1, WO 91/07452 oder DE 24 20 475), Eisen(III)-chlorid, Zinkchlorid, Zink-2-ethylcaproat und Molybdänglykolat oder tertiäre Amine, wie Triethylamin, Pyridin, Methylpyridin, Benzyldimethylamin, N,N-Endoethylenpiperazin, N-Methylpiperidin, Pentamethyldiethylentriamin, N,N-Dimethylaminocyclohexan und N,N'-Dimethylpiperazin (z.B. EP 639 598 A1).

In der Praxis kommen im allgemeinen zinnorganische Verbindungen der genannten Art zum Einsatz. Die mit diesen Katalysatoren erreichbaren Reaktivitätserhöhungen genügen noch nicht den Ansprüchen an, bei niedrigen Temperaturen aushärtende Massen.

In EP 803 524 A1 werden N,N'-trisubstituierte Amidine enthaltende Verbindungen als Spaltungskatalysatoren beschrieben. Gegenstand dieses Standes der Technik ist ein Polyurethan-Pulverlack, der eine Hydroxylgruppen aufweisende Bindemittelkomponente, eine Urettdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisende Polyadditionsverbindung auf Basis aliphatischer und/oder cycloaliphatischer Diisocyanate, mindestens einen N,N,N'-trisubstituierte Amidinstrukturen enthaltenden Katalysator mit einem Amidinruppengehalt (berechnet als CN<sub>2</sub>; Molekulargewicht = 40) von 12,0 bis 47,0 Gew.-%, gegebenenfalls weitere aus der Polyurethanchemie bekannte Katalysatoren und gegebenenfalls weitere aus der Pulverlacktechnologie bekannte Hilfs- und Zusatzstoffe enthält. Die Hydroxylgruppen aufweisende Bindemittelkomponente wird in dem Pulverlack in solchen Mengen eingesetzt, daß auf jede Hydroxylgruppe der Bindemittelkomponente 0,6 bis 1,4, vorzugsweise 0,8 bis 1,2 Isocyanatgruppen der Urettdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisenden Polyadditionsverbindung entfallen, wobei unter

Isocyanatgruppen die Summe aus in dimerer Form als Uretdiongruppen vorliegenden Isocyanatgruppen und freien Isocyanatgruppen verstanden wird.

In der Veröffentlichung werden mögliche Härtungstemperaturen ab 130°C genannt. Den Ausführungsbeispielen ist jedoch zu entnehmen, daß bei Härtungstemperaturen bis 170°C keine qualitativ hochwertigen Beschichtungen erhalten wurden.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es nun, uretdiongruppenhaltige Massen mit höherer Reaktivität zur Verfügung zu stellen, die bei niedrigeren Temperaturen in gleicher Zeit oder bei gleichen Temperaturen in deutlich kürzerer Zeit als die bislang bekannten, Uretdionhärter enthaltenden Massen aushärten.

Die Aufgabe wird durch die Erfindung nach den Ansprüchen 1 und 11 gelöst. Weiterbildungen sind Gegenstand der Unteransprüche.

Mit der Bereitstellung der erfindungsgemäßen Massen konnte diese Aufgabe gelöst werden. Die erfindungsgemäßen Massen basieren auf der Tatsache, daß unter den erfindungsgemäßen Bedingungen Lewissäure-Katalysatoren, insbesondere metallorganische Verbindungen die Umsetzung von Uretdiongruppen mit Hydroxylgruppen so stark beschleunigen, daß sich mit ihrer Hilfe unter Verwendung der bekannten Uretdionhärter Massen herstellen lassen, die bereits bei vergleichsweise niedrigen Temperaturen in gleicher Zeit oder bei gleichen Temperaturen in deutlich kürzerer Zeit als die bislang bekannten, Uretdionhärter enthaltenden Massen aushärten.

Die Erfindung betrifft bei niedrigen Temperaturen aushärtbare uretdiongruppenhaltige Massen, enthaltend A) eine Hydroxylgruppen aufweisende Bindemittelkomponente, B) eine Uretdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisende Polyadditionsverbindung als Vernetzer, C) mindestens einen aktiven oder reaktiv aktivierbaren Lewissäure-Katalysator, gegebenenfalls D) weitere aus der Polyurethanchemie bekannte Katalysatoren und gegebenenfalls E) an sich bekannte Hilfs- und Zusatzmittel, mit der Maßgabe, daß (A1) die Bindemittelkomponente frei von Carboxylgruppen ist, oder (A2) die Konzentration an Carboxylgruppen kleiner ist als die Konzentration an aktivem Katalysator (C) oder (A3) bei einer höheren Konzentration an Carboxylgruppen gegenüber der eingesetzten Katalysatorkonzentration (C) eine solche Menge an reaktivem Agens, wie z.B. Epoxyverbindung oder Oxazolin zugegeben wird, die zur Blockierung der Menge an Carboxylgruppen notwendig ist, um eine notwendige Konzentration an aktivem Katalysator (C) zu realisieren.

Gegenstand der Erfindung ist auch die Verwendung der Massen zur Beschichtung von hitzeresistenten und thermolabilen Substraten, zur Verkapselung von Bauteilen, als verarbeitbare, härtbare Formmasse und als thermisch härtbare Spachtelmasse.

Bei der, in den erfindungsgemäßen Massen enthaltenen Komponente A) handelt es sich um beliebige Hydroxylgruppen aufweisende Bindemittel mit einer OH-Zahl von 25 bis 400, vorzugsweise von 25 bis 200 und einem mittleren Molekulargewicht von 400 bis 20.000, vorzugsweise von 1.000 bis 10.000, die oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegt. Derartige Bindemittel sind beispielsweise hydroxylgruppenhaltige Polyester, Polyacrylate, Polyether oder Polyurethane aber auch beliebige Mischungen solcher Harze.

Bei der in den erfindungsgemäßen Massen enthaltenen Komponente B) handelt es sich um eine oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegende, Uretidiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisende Polyadditionsverbindung auf der Basis aliphatischer und/oder cycloaliphatischer Diisocyanate, insbesondere um solche auf Basis von 1,6-Hexamethylen-diisocyanat (HDI), 1-Isocyanato-3,3,5-trimethyl-5-isocyanatomethylcyclohexan (IPDI), 4,4'-Diisocyanatodicyclohexylmethan, 1,3-Diisocyanato-2(4)-methylcyclohexan oder beliebiger Gemische dieser Diisocyanate, wobei HDI und IPDI bevorzugt sind.

Die Komponente B) wird in den erfindungsgemäßen Massen in solchen Mengen eingesetzt, daß auf jede Hydroxylgruppe der Bindemittelkomponente A) 0,8 bis 2,4, vorzugsweise 0,9 bis 2,2 Isocyanatgruppen der Komponente B) entfallen, wobei unter Isocyanatgruppen der Komponente B) die Summe aus in dimerer Form als Uretidiongruppen vorliegenden Isocyanatgruppen und freien Isocyanatgruppen verstanden wird.

Zur Beschleunigung der Aushärtung enthalten die erfindungsgemäßen Massen Lewissäure-Katalysatoren C), vorzugsweise metallorganische Verbindungen wie z.B. vom Zinn- und/oder Zink- und/oder Cadmium- und/oder Eisen- und/oder Mangan- und/oder Molybdän- und/oder Aluminium- und/oder Kobalt- und/oder Zirkoniumtyp in Abwesenheit oder in Gegenwart von tertiären Amin- und/oder anwesenden oder sich reaktiv bildenden Ammonium- und/oder N,N,N'-trisubstituierte Amidin- und/oder anwesenden oder sich reaktiv bildenden Phosphonium- und/oder Imidazol- und/oder Epoxyverbindungen zur Aktivierung oder Erhöhung der Katalysatorwirkung.

Einsetzbare Katalysatoren C) sind metallorganische Verbindungen der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

R = Alkylrest und

X = Carboxylatrest bedeutet,

sowie metallorganische Verbindungen der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

R = Alkylrest und

Y = Alkoholatrest bedeutet,

sowie metallorganische Verbindungen der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

Z = Acetylacetonatrest und

n = 2 oder 3 bedeutet,

oder beliebige Mischungen solcher metallorganischer Katalysatoren.

Einsetzbare Katalysatoren C) sind auch die Derivate der oben genannten Verbindungen aus Folgereaktionen, wie z.B. Hydrolyse- und Zersetzungsprodukte oder beliebige Mischungen dieser Derivate oder beliebige Mischungen der oben genannten Katalysatoren mit diesen Derivaten.

Die Katalysatoren C) kommen in den erfindungsgemäßen Massen in einer Menge von 0,01 bis 5,0 Gew.-%, vorzugsweise von 0,1 bis 3,0 Gew.-% bezogen auf die Gesamtmenge der Komponenten A) bis D) zum Einsatz.

Gegebenenfalls können in den erfindungsgemäßen Massen als weitere Katalysatoren D) aus der Polyurethanchemie bekannte Verbindungen mitverwendet werden.

Gegebenenfalls können die erfindungsgemäßen Massen an sich bekannte Hilfs- und Zusatzmittel (E) enthalten, wie z.B. Verlaufsmittel, Lichtschutzmittel, UV-Absorber, Pigmente, oder auch Farbstabilisatoren.

Die Homogenisierung der einzelnen Massebestandteile erfolgt durch Mischen der Komponenten in Schmelze, vorzugsweise in einem Laborkneter, Co-Kneter oder Extruder. Temperatur und/oder Mischzeit und/oder Drehzahl werden so eingestellt, daß während der Homogenisierung im wesentlichen noch keine Verzweigungs- oder Polymeraufbaureaktionen stattfinden. Im Laborkneter erfolgt beispielsweise zunächst ein Aufschmelzen der Komponente A. Danach erfolgt schrittweise die Zugabe der Komponenten B und E. Zuletzt erfolgt die Dosierung des Katalysators C oder Katalysatorgemisches C und D, vorzugsweise als Batch. Für die Homogenisierung in einem Co-Kneter oder im Extruder werden beispielsweise alle Komponenten gründlich gemischt und anschließend im Co-Kneter oder Extruder homogenisiert. Die Homogenisierung der Komponenten erfolgt bei Massetemperaturen zwischen 50 und 110°C bevorzugt zwischen 70 und 100°C und dauert bis 30 min. Zur Erzielung einer optimalen Durchmischung kann im Co-Kneter oder im Extruder eine zweimalige Extrusion vorteilhaft sein, wobei die Komponente C gegebenenfalls auch erst im zweiten Extrusionsschritt zugegeben werden kann.

Die homogenisierte Masse wird nachfolgend durch schnelles Abkühlen zum Erstarren gebracht. Dies erfolgt durch Aufbringen der Schmelze auf ein Kühlband oder Einbringen in flüssigen Stickstoff. Die erstarrte Masse wird gebrochen und zerkleinert oder bei Pulverlacken anschließend mit einer Sichter mühle zu Pulver mit einer Teilchengröße  $< 90 \mu\text{m}$  vermahlen.

Die Homogenisierung der Komponenten kann auch in Lösung erfolgen. Die Homogenisierungstemperatur liegt dabei oberhalb Raumtemperatur und übersteigt im wesentlichen nicht 110°C. Vorteilhafterweise liegt hier mindestens eine der Komponenten (A-E), bevorzugt A und/oder B, in flüssiger Form vor, in der mindestens eine der anderen Komponenten löslich ist. Die homogenisierte Masse wird nachfolgend durch Abschrecken schlagartig auf Temperaturen von mindestens 20 K unter Mischungstemperatur abgekühlt und kann danach bis zur Verarbeitung gelagert werden.

Es sind hochreaktive, thermisch härtbare Systeme herstellbar, bei denen die reaktiven Komponenten einschließlich Katalysatoren und gegebenenfalls verwendungsbedingt anderen Zusatzstoffen beispielsweise durch Schmelzeextrusion homogeni-



siert und anschließend zerkleinert und/oder pulverisiert werden und über eine ausreichend hohe Lagerstabilität verfügen.

Bei Weiterverarbeitung der erfindungsgemäßen Massen zur Beschichtung, können die so hergestellten Pulverlackformulierungen nach üblichen Beschichtungsverfahren, wie z. B. elektrostatischem Pulversprühen oder Wirbelsintern, auf die zu beschichtenden Substrate aufgebracht werden. Die Härtung der Überzüge erfolgt durch Erhitzen auf Temperaturen von 110 bis 200°C, vorzugsweise auf Temperaturen von 120 bis 180°C, bis eine vollständige Vernetzung erreicht und über DSC-Messungen im wesentlichen keine Reaktionswärme mehr nachweisbar ist. Die Temperaturerhöhung erfolgt dabei linear und/oder nichtlinear und/oder die Temperatur wird bei Reaktionstemperatur konstant gehalten. Bei höheren Temperaturen, die den Härtungstemperaturen des Standes der Technik entsprechen, erfolgt eine Härtung in deutlich kürzerer Zeit. Andererseits kann erfindungsgemäß die Härtung bei deutlich niedrigeren Temperaturen erreicht werden. Die Härtung der härtbaren Massen kann beispielsweise in zwei oder mehr aufeinanderfolgenden oder zeitlich getrennten Härtungsstufen bei gleichen oder unterschiedlichen Härtungstemperaturen durchgeführt werden.

Nach der Teilvernetzung der härtbaren Massen oder beispielsweise einer Beschichtung in der ersten Härtungsstufe erfolgt gegebenenfalls nach einer Bearbeitung die Aushärtung in der zweiten Härtungsstufe. Während der Aushärtung ist eine chemische Kopplung von Massen oder Beschichtungen in der Grenzfläche der härtbaren Massen oder Beschichtungen möglich.

Die erste Reaktionsstufe wird bei relativ niedrigen Temperaturen vorzugsweise  $\leq 160$  °C durchgeführt. Wird die eingesetzte Menge an Katalysator (C) gesenkt, ist die Temperatur für die erste Reaktionsstufe zu erhöhen und/oder die Reaktionszeit zu verlängern. Die zweite Reaktionsstufe wird bei mindestens gleichen Reaktionstemperaturen bei deutlich längerer Reaktionszeit oder vorzugsweise bei höheren Temperaturen als die erste Reaktionsstufe in kürzerer Zeit bis zur vollständigen Härtung durchgeführt.

Erfindungsgemäß können beliebige hitzeresistente Substrate, wie beispielsweise Glas oder Metalle, aber auch thermolabile Substrate wie Kunststoffe oder Holz beschichtet werden.

Durch den Einsatz der erfindungsgemäßen Katalysatoren unter den beschriebenen Bedingungen ist die Umsetzung der Uretdiongruppen enthaltenden Härter mit Hydroxylgruppen enthaltenden Bindemittelkomponenten bei vergleichsweise niedrigen Temperaturen möglich.

Ist der Carboxylgruppengehalt der Bindemittelkomponente B) gleich oder größer als der Gehalt an Katalysator C), gelingt es durch Zugabe z.B. von Epoxyverbindung eine ausreichende Menge an Carboxylgruppen zu blockieren, so daß eine katalytisch wirksame Konzentration an aktivem Katalysator C) entsteht.

Zwar ist die Verwendung von Dialkylzinndicarboxylaten als Katalysatoren für die Vernetzung hydroxylgruppenhaltiger Binder mit uretdiongruppenhaltigen Härtern nach dem Stand der Technik bekannt, unter den beschriebenen Bedingungen ist aber keine katalytische Aktivität der beschriebenen metallorganischen Verbindungen auf die Umsetzung der Urettdionfunktion nachweisbar. Die im Vergleich zu unkatalysierten Massen erniedrigten Härtungstemperaturen der im Stand der Technik beschriebenen Urettdiongruppen enthaltende Massen ist vielmehr auf eine Beschleunigung der Umsetzung der thermisch aus den Urettdionringen regenerierten Isocyanatgruppen mit Hydroxylgruppen zurückzuführen.

Im weiteren wird die Erfindung an Ausführungsbeispielen näher erläutert. Dabei ist in Beispiel 1 der Stand der Technik in Form einer unkatalysierten Zusammensetzung dargestellt.

### Beispiele

In einem Laborkneteter werden die Verbindungen (A) und (B) homogenisiert. Die Kneterkammertemperatur wird so eingestellt, daß die Massetemperatur 90°C nicht wesentlich überschreitet. Zu dieser Masse werden nacheinander die Verbindungen (E), (D) und (C) zugegeben.

Die Zusammensetzungen der Beispielmischungen sind in Tabelle 1 angegeben. Die Eigenschaften der eingesetzten Komponenten sind in Tabelle 2 angegeben.

Die homogenisierten Massen werden durch Einbringen in flüssigen Stickstoff abgeschreckt. Die abgeschreckten Massen werden in einer Labormühle unter Kühlung zerkleinert und bei 30°C im Vakuum getrocknet. Die Charakterisierung der Proben erfolgt mittels Differential Scanning Calorimetrie (DSC). Die Untersuchungen erfolgen dynamisch in einem Temperaturbereich von 40 bis 260°C bei einer Aufheizgeschwindigkeit von 10 K/min. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3 angegeben.

**Tabelle 1: Zusammensetzung der Beispielmischungen \***

Komponenten/Beispiel	1	2	3	4	5	6	7	8
(A) Hydroxylterminierter Polyester	75,7	75,7	75,7	75,7	75,7	75,7	-	75,7
(A1) Hydroxylterminiertes Polycaprolacton	-	-	-	-	-	-	76,7	-
(A3) Triglycidylisocyanurat	2,9	2,9	2,9	2,9	2,9	-	-	-
(B) Uretdiongruppen enthaltende Polyadditionsverbindung	24,3	24,3	24,3	24,3	24,3	24,3	24,3	24,3
(C) Dibutylzinndilaurat	-	1,0	-	-	-	-	-	-
(C) Dibutylzinndibutylat	-	-	1,0	-	-	-	-	-
(C) Zinkacetylacetonat	-	-	-	1,0	1,0	1,0	1,0	3,0
(D) Benzyltrimethylammonium- chlorid	-	-	-	-	1,0	1,0	-	-
(E) Acronal 4F	-	-	-	-	-	0,6	-	-
(E) Weißpigment	-	-	-	-	-	0,6	-	-

\* alle Angaben sind in Gew.-%

**Tabelle 2: Eigenschaften der in den Beispielen eingesetzten Komponenten**

Komponente	OH-Zahl	COOH-Zahl	Isocyanat-Equivalent	T <sub>m</sub> (°C)
Hydroxylterminierter Polyester	30	≤5	-	56
Hydroxylterminiertes Polycaprolacton	56	≤0,1	-	40-50
Triglycidylisocyanurat	-	-	-	98
Uretdiongruppen enthaltende Polyadditionsverbindung	-	-	310	54

**Tabelle 3: Ergebnisse der thermischen Untersuchungen (dynamisch)**

Probennummer	1	2	3	4	5	6	7	8
Beginn der Reaktion T <sub>onset</sub> (°C)	184,2	144,0	134,9	131,0	128,2	123,6	122,4	119,1
Reaktionsmaximum T <sub>max</sub> (°C)	211,8	164,6	160,3	145,3	145,2	141,6	139,4	141,8

**Tabelle 4: Ergebnisse der thermischen Untersuchungen (isotherm)**

Beispiel	1	2	3	4	5
Reaktionstemperatur in °C	150	150	150	130	130
Reaktionszeit (min) bis zur weitgehend vollst. Vernetzung	- *)	17	16	12	12

\*) keine nennenswerte Vernetzung eingetreten

## Patentansprüche

1. Härtbare, uretdiongruppenhaltige Massen, enthaltend (A) eine, endständige und/oder seitenständige Hydroxylgruppen aufweisende, lineare oder verzweigte Bindemittel-Komponente mit einer OH- Zahl von 25 bis 400 und einem mittleren Molekulargewicht von 400 bis 20.000, die oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegt, wobei (A1) entweder die Bindemittelkomponente frei von Carboxylgruppen ist, oder (A2) die Konzentration an Carboxylgruppen kleiner ist als die Konzentration an aktivem Katalysator (C) oder (A3) bei einer höheren Konzentration an Carboxylgruppen gegenüber der eingesetzten Katalysatorkonzentration (C) eine solche Menge reaktivem Agens zugegeben wird, die zur Blockierung der Menge an Carboxylgruppen notwendig ist, um eine notwendige Konzentration an aktivem Katalysator (C) zu realisieren, und (B) eine oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegende, Urettdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisende Polyadditionsverbindung auf der Basis aliphatischer und/oder cycloaliphatischer Diisocyanate und (C) mindestens einen aktiven oder einen reaktiv aktivierbaren Lewissäure- Katalysator und (D) weitere aus der Urethanchemie bekannte Katalysatoren und (E) an sich bekannte Hilfs- und Zusatzmittel, wobei (D) und (E) zugegeben sein können.

2. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente (A) aus einer Hydroxylgruppen aufweisenden polymeren Verbindung besteht, wie z.B. Polyacrylate, Polyether, Polyester und Oligo- bzw. Polyepoxide.

3. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente (B) aus einer Urettdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisenden Polyadditionsverbindung auf Basis von Isophorondiisocyanat und/oder Hexamethylendiisocyanat besteht.

4. Massen gemäß Anspruch 1, bei dem das reaktive Agens eine Epoxyverbindung und/oder eine Oxazolinverbindung ist.

5. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente (C) aus mindestens einem metallorganischen Katalysator der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall  
R = Alkylrest und  
X = Carboxylatrest bedeutet,  
besteht.

6. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente (C) aus mindestens einem metallorganischen Katalysator der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

R = Alkylrest und

Y = Alkoholatrest bedeutet,  
besteht.

7. Härtbare Masse gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponente (C) aus mindestens einem metallorganischen Katalysator der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

Z = Acetylacetonatrest und

n = 2 oder 3 bedeutet,  
besteht.

8. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente (C) aus mindestens einem Derivat eines metallorganischen Katalysators gemäß den Ansprüchen 5 bis 7 besteht.

9. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente (C) aus beliebigen Mischungen der genannten metallorganischen Katalysatoren und Derivate gemäß der Ansprüche 5 bis 8 besteht.

10. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente (D) aus nucleophilen Substanzen besteht.

11. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente (A) eine OH-Zahl von 25 bis 200 und ein mittleres Molekulargewicht von 1.000 bis 10.000 aufweist.

12. Verfahren zur Herstellung von härtbaren, uretdiongruppenhaltigen Massen nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 11, bei dem als Ausgangsstoffe unvernetzte Massen, bestehend aus (A) einer, endständige und/oder seitenständige Hydroxylgruppen aufweisenden, linearen oder verzweigten Bindemittel-Komponente mit einer OH-Zahl von 25 bis 400 und einem mittleren Molekulargewicht von 400 bis 20.000, die oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegt, wobei (A1) entweder die Bindemittelkomponente frei von Carboxylgruppen ist, oder (A2) die Konzentration an Carboxylgruppen kleiner ist als die Konzentration an aktivem Katalysator (C) oder (A3) bei einer höheren Konzentration an Carboxylgruppen gegenüber der eingesetzten Katalysatorkonzentration (C) eine solche Menge an reaktivem Agens zugegeben wird, die zur Blockierung der Menge an Carboxylgruppen notwendig ist, um eine notwendige Konzentration an aktivem Katalysator (C) zu realisieren, und (B) einer oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegenden, Urettdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisenden Polyadditionsverbindung auf der Basis aliphatischer und/oder cycloaliphatischer Diisocyanate und (C) mindestens einem aktiven oder einem reaktiv aktivierbaren Lewissäure- Katalysator und (D) weiteren, aus der Urethanchemie bekannte Katalysatoren und (E) an sich bekannten Hilfs- und Zusatzmitteln, wobei (D) und (E) zugegeben sein können, eingesetzt werden, diese Ausgangsstoffe in Lösung und/oder in Schmelze längstens bis eine Molmassenerhöhung nachweisbar ist, homogenisiert werden, danach die Lösung oder die Schmelze schnell unterhalb der Reaktionstemperatur der Masse abgekühlt wird und anschließend eine Lagerung der härtbaren Masse erfolgen kann und danach oder an die Abkühlung anschließend die Weiterverarbeitung der härtbaren Masse zur vollständigen Vernetzung durchgeführt wird, wobei die Temperatur solange linear und/oder nichtlinear erhöht und/oder bei Reaktionstemperatur konstant gehalten wird, bis über DSC-Messungen im wesentlichen keine Reaktionswärme mehr nachweisbar ist.

13. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen in Schmelze in einem Laborkneteter oder einem Co-Kneteter und/oder einem Extruder erfolgt.

14. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen bei Temperaturen kleiner gleich 110°C, bevorzugt zwischen 50 und 100°C erfolgt.

15. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen bis 30 min durchgeführt wird.
16. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Abkühlung unter die Reaktionstemperatur nach der Homogenisierung der härtbaren Massen durch Einbringen der Schmelze in flüssigen Stickstoff oder durch Aufbringen auf ein Kühlband erfolgt.
17. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem mindestens eine der Komponenten (A) bis (E), bevorzugt (A) und (B) in flüssiger Form eingesetzt wird.
18. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Temperatur in einem Bereich von bevorzugt 20 K oberhalb der Homogenisierungstemperatur bis 200°C, vorzugsweise bis 180°C, linear und/oder nichtlinear angehoben wird.
19. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Zugabe des Katalysators oder Katalysatorgemisches (C;D) als Batch nach der Homogenisierung der Komponenten (A), (B) und (E) bei abgesenkten Temperaturen durchgeführt wird.
20. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen in Schmelze erfolgt.
21. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen ein- oder mehrstufig in Schmelze durchgeführt wird, wobei der Katalysator bei einstufiger Homogenisierung bei tieferen Temperaturen und bei mehrstufiger Homogenisierung erst in der zweiten Stufe bei tieferen Temperaturen zudosiert wird.
22. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Temperatur stufenweise erhöht wird und die Temperatur nach jedem Erhöhungsschritt für eine Zeitspanne von 1 bis 60 Minuten, vorteilhafterweise von 5 bis 30 Minuten, konstant gehalten wird.
23. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Temperatur in zwei Stufen erhöht wird, wobei die zweite Temperaturerhöhung nach der Haltezeit unmittelbar darauffolgend oder zeitlich später durchgeführt wird.



24. Verwendung der Massen nach den Ansprüchen 1 bis 11 zur Beschichtung von hitzeresistenten und thermolabilen Substraten, zur Verkapselung von Bauteilen, als verarbeitbare, härtbare Formmasse und als thermisch härtbare Spachtelmasse.



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 99/09465

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
IPC 7 C08G18/79 C08G18/22

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
IPC 7 C08G

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	US 5 621 064 A (LAAS HANS-JOSEF ET AL) 15 April 1997 (1997-04-15) column 6, line 50 - column 7, line 14; claim 1; examples 1,7,8	1-3,5, 11,23 12
X A	US 5 756 634 A (SCHMITT FELIX ET AL) 26 May 1998 (1998-05-26) column 10, line 1 - line 10; claims 1,2,10,11; table 1	1-3,5,7, 23 12
A	US 4 732 957 A (SCHUSTER PETER ET AL) 22 March 1988 (1988-03-22) column 9, line 22 - line 47; claims 1,3,5-7	1-3,5,6, 11,23

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

13 April 2000

Date of mailing of the international search report

20/04/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Angiolini, D

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

information on patent family members

Inter. Appl. Application No

PCT/EP 99/09465

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 5621064 A	15-04-1997	DE 4327573 A	23-02-1995
		AT 156155 T	15-08-1997
		AU 678489 B	29-05-1997
		AU 7027294 A	02-03-1995
		CA 2130075 A	18-02-1995
		DE 59403526 D	04-09-1997
		EP 0639598 A	22-02-1995
		ES 2105439 T	16-10-1997
		JP 7082339 A	28-03-1995
		ZA 9406157 A	27-03-1995
US 5756634 A	26-05-1998	DE 19532294 A	06-03-1997
		AT 186926 T	15-12-1999
		CA 2184559 A	02-03-1997
		DE 59603706 D	30-12-1999
		EP 0761705 A	12-03-1997
		JP 9132754 A	20-05-1997
US 4732957 A	22-03-1988	DE 3511754 A	09-10-1986
		AT 75497 T	15-05-1992
		CA 1332995 A	08-11-1994
		DE 3685051 A	04-06-1992
		DK 142886 A	01-10-1986
		EP 0199967 A	05-11-1986
		ES 553440 D	16-01-1987
		ES 8702931 A	01-04-1987
		FI 861348 A	01-10-1986
		JP 1994169 C	22-11-1995
		JP 7030286 B	05-04-1995
		JP 61231017 A	15-10-1986
		NO 860934 A	01-10-1986

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/09465

**A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES**  
IPK 7 C08G18/79 C08G18/22

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 7 C08G

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X A	US 5 621 064 A (LAAS HANS-JOSEF ET AL) 15. April 1997 (1997-04-15) Spalte 6, Zeile 50 - Spalte 7, Zeile 14; Anspruch 1; Beispiele 1,7,8	1-3,5, 11,23 12
X A	US 5 756 634 A (SCHMITT FELIX ET AL) 26. Mai 1998 (1998-05-26) Spalte 10, Zeile 1 - Zeile 10; Ansprüche 1,2,10,11; Tabelle 1	1-3,5,7, 23 12
A	US 4 732 957 A (SCHUSTER PETER ET AL) 22. März 1988 (1988-03-22) Spalte 9, Zeile 22 - Zeile 47; Ansprüche 1,3,5-7	1-3,5,6, 11,23

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*Z\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

13. April 2000

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

20/04/2000

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Angiolini, D

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/09465

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 5621064 A	15-04-1997	DE 4327573 A	23-02-1995
		AT 156155 T	15-08-1997
		AU 678489 B	29-05-1997
		AU 7027294 A	02-03-1995
		CA 2130075 A	18-02-1995
		DE 59403526 D	04-09-1997
		EP 0639598 A	22-02-1995
		ES 2105439 T	16-10-1997
		JP 7082339 A	28-03-1995
		ZA 9406157 A	27-03-1995
US 5756634 A	26-05-1998	DE 19532294 A	06-03-1997
		AT 186926 T	15-12-1999
		CA 2184559 A	02-03-1997
		DE 59603706 D	30-12-1999
		EP 0761705 A	12-03-1997
		JP 9132754 A	20-05-1997
US 4732957 A	22-03-1988	DE 3511754 A	09-10-1986
		AT 75497 T	15-05-1992
		CA 1332995 A	08-11-1994
		DE 3685051 A	04-06-1992
		DK 142886 A	01-10-1986
		EP 0199967 A	05-11-1986
		ES 553440 D	16-01-1987
		ES 8702931 A	01-04-1987
		FI 861348 A	01-10-1986
		JP 1994169 C	22-11-1995
		JP 7030286 B	05-04-1995
		JP 61231017 A	15-10-1986
		NO 860934 A	01-10-1986

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents  
United States Patent and Trademark  
Office  
Box PCT  
Washington, D.C. 20231  
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

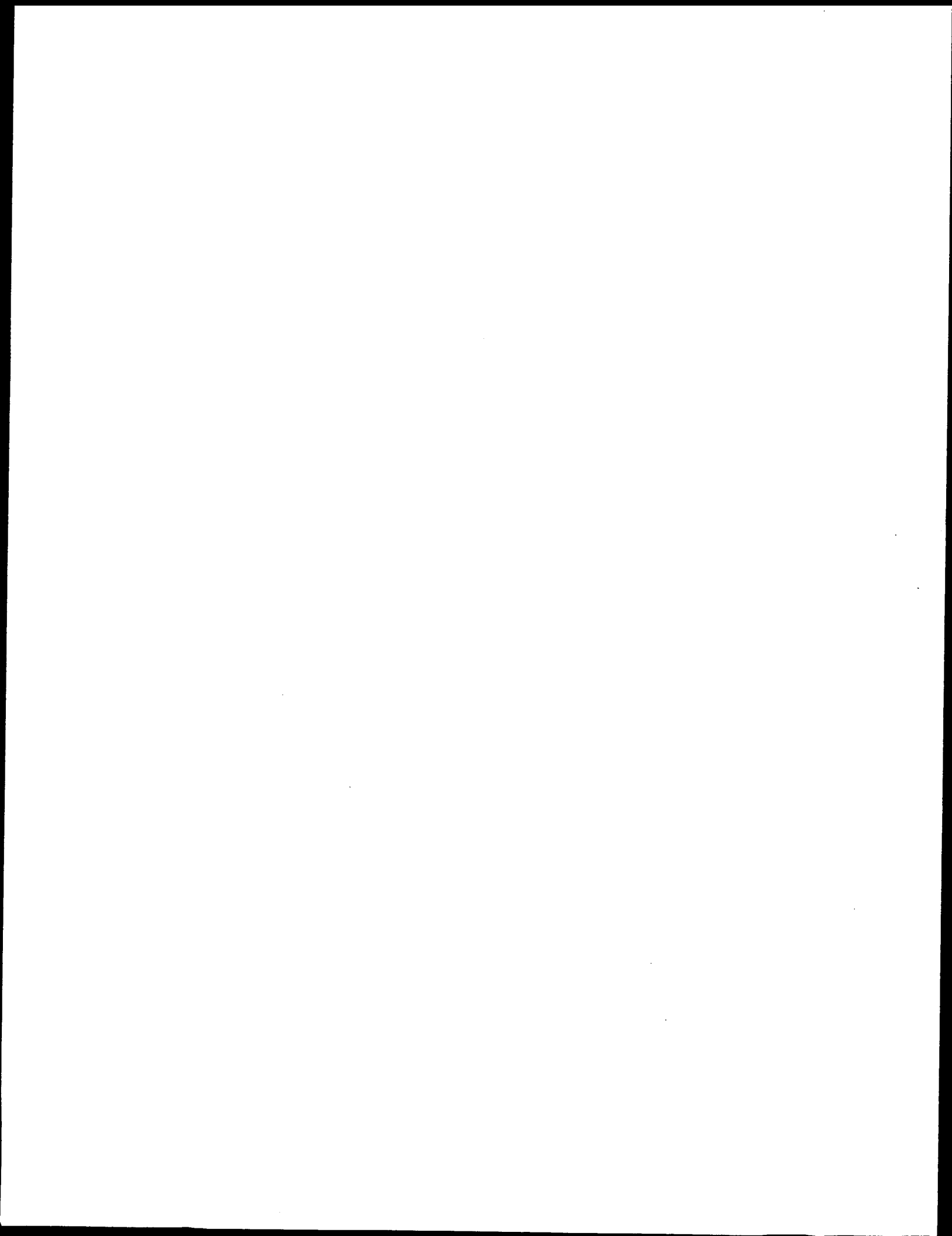
Date of mailing: 15 June 2000 (15.06.00)	
International application No.: PCT/EP99/09465	Applicant's or agent's file reference: 9806/IPF/PCT
International filing date: 03 December 1999 (03.12.99)	Priority date: 10 December 1998 (10.12.98)
Applicant: LEHMANN, Frank et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International preliminary Examining Authority on:  
16 March 2000 (16.03.00)☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:  
\_\_\_\_\_2. The election ☒ was☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer:  J. Zahra Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	---





# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/EP 99/09465

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C08G18/79 C08G18/22

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C08G

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	US 5 621 064 A (LAAS HANS-JOSEF ET AL) 15 April 1997 (1997-04-15) column 6, line 50 - column 7, line 14; claim 1; examples 1,7,8	1-3,5, 11,23 12
X A	US 5 756 634 A (SCHMITT FELIX ET AL) 26 May 1998 (1998-05-26) column 10, line 1 - line 10; claims 1,2,10,11; table 1	1-3,5,7, 23 12
A	US 4 732 957 A (SCHUSTER PETER ET AL) 22 March 1988 (1988-03-22) column 9, line 22 - line 47; claims 1,3,5-7	1-3,5,6, 11,23

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents:

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- \*G\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

13 April 2000

Date of mailing of the international search report

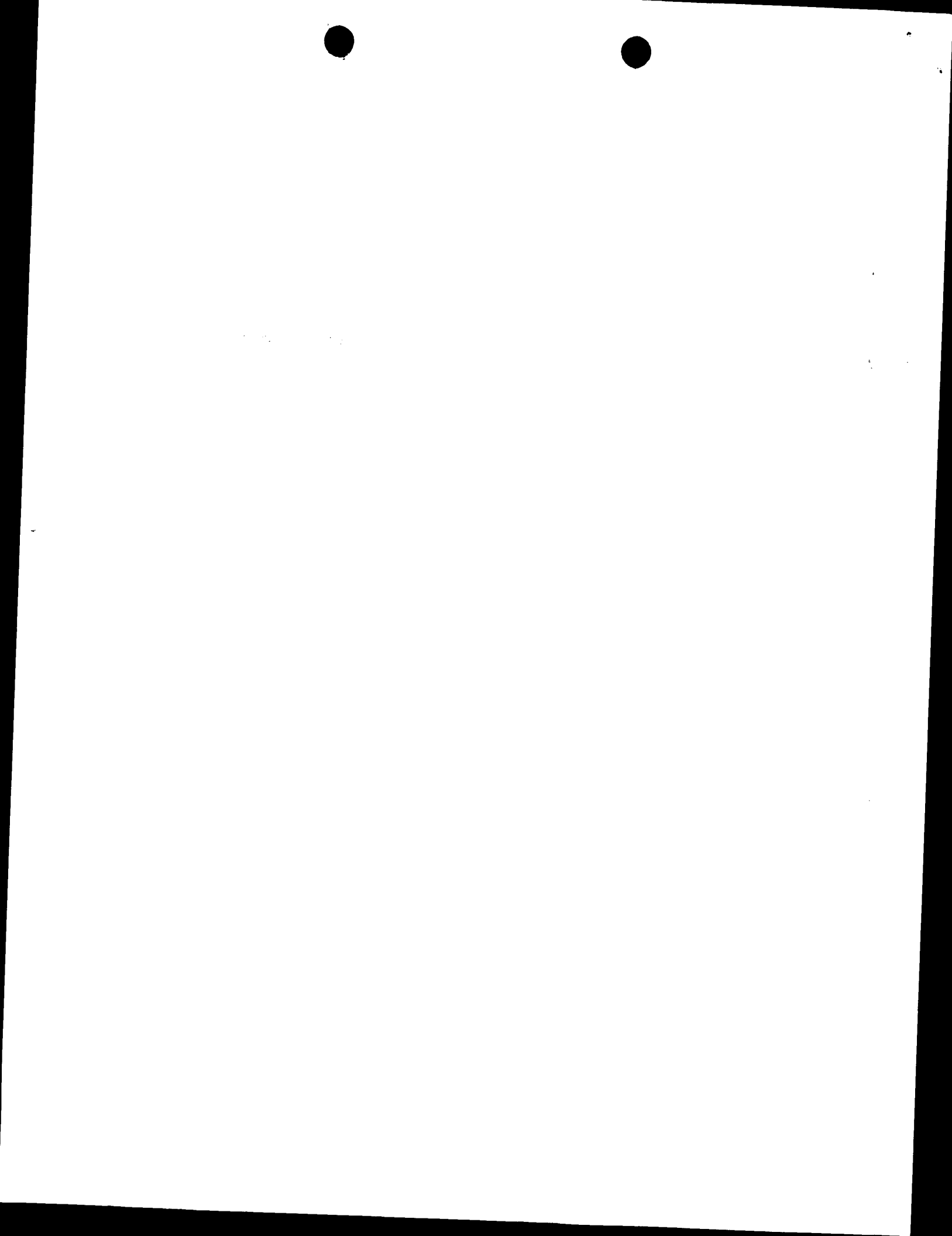
20/04/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Angiolini, D



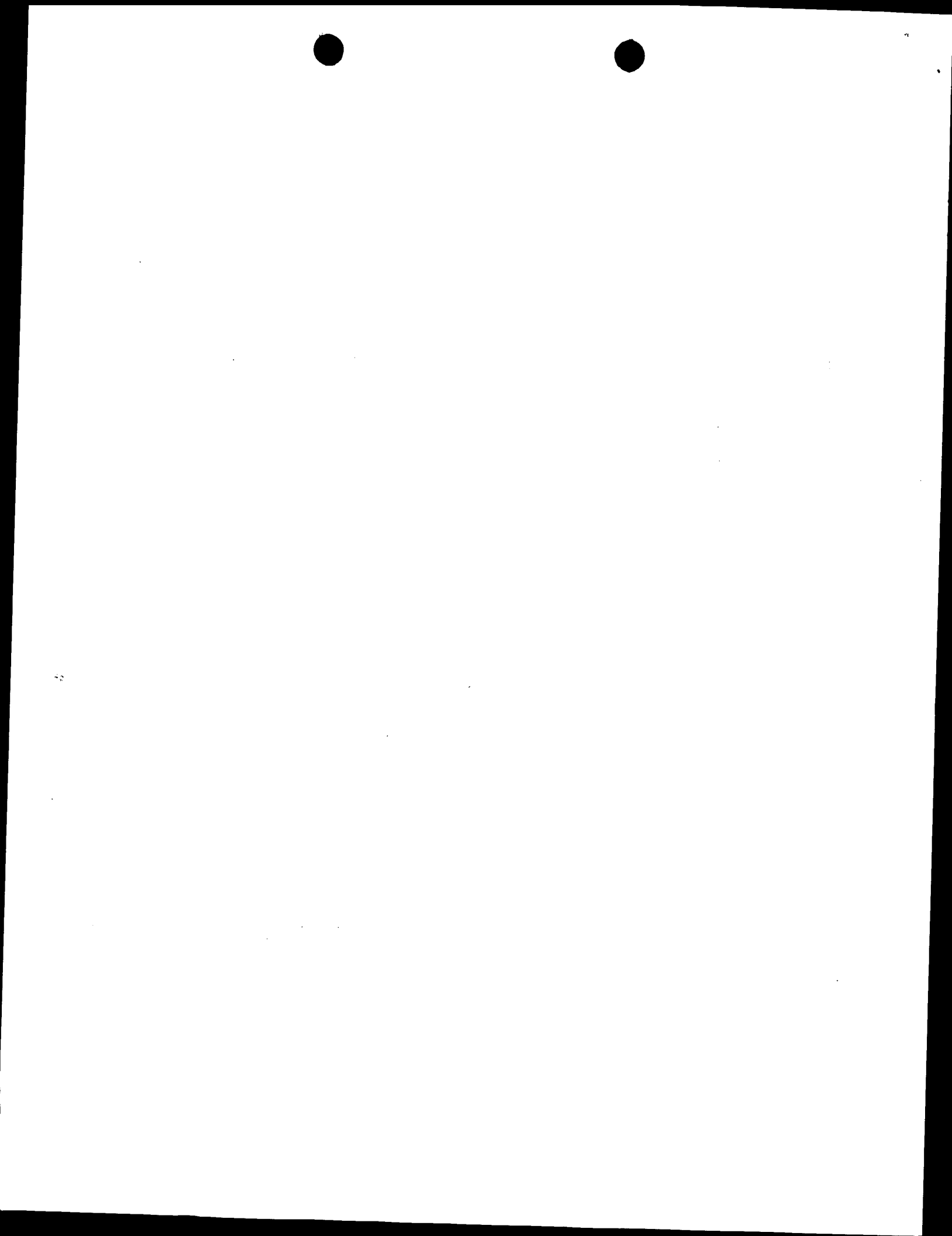
## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

information on patent family members

Inter. Natl. Application No.

PCT/EP 99/09465

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 5621064 A	15-04-1997	DE 4327573 A	23-02-1995
		AT 156155 T	15-08-1997
		AU 678489 B	29-05-1997
		AU 7027294 A	02-03-1995
		CA 2130075 A	18-02-1995
		DE 59403526 D	04-09-1997
		EP 0639598 A	22-02-1995
		ES 2105439 T	16-10-1997
		JP 7082339 A	28-03-1995
		ZA 9406157 A	27-03-1995
US 5756634 A	26-05-1998	DE 19532294 A	06-03-1997
		AT 186926 T	15-12-1999
		CA 2184559 A	02-03-1997
		DE 59603706 D	30-12-1999
		EP 0761705 A	12-03-1997
		JP 9132754 A	20-05-1997
US 4732957 A	22-03-1988	DE 3511754 A	09-10-1986
		AT 75497 T	15-05-1992
		CA 1332995 A	08-11-1994
		DE 3685051 A	04-06-1992
		DK 142886 A	01-10-1986
		EP 0199967 A	05-11-1986
		ES 553440 D	16-01-1987
		ES 8702931 A	01-04-1987
		FI 861348 A	01-10-1986
		JP 1994169 C	22-11-1995
		JP 7030286 B	05-04-1995
		JP 61231017 A	15-10-1986
		NO 860934 A	01-10-1986



## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Translation

10

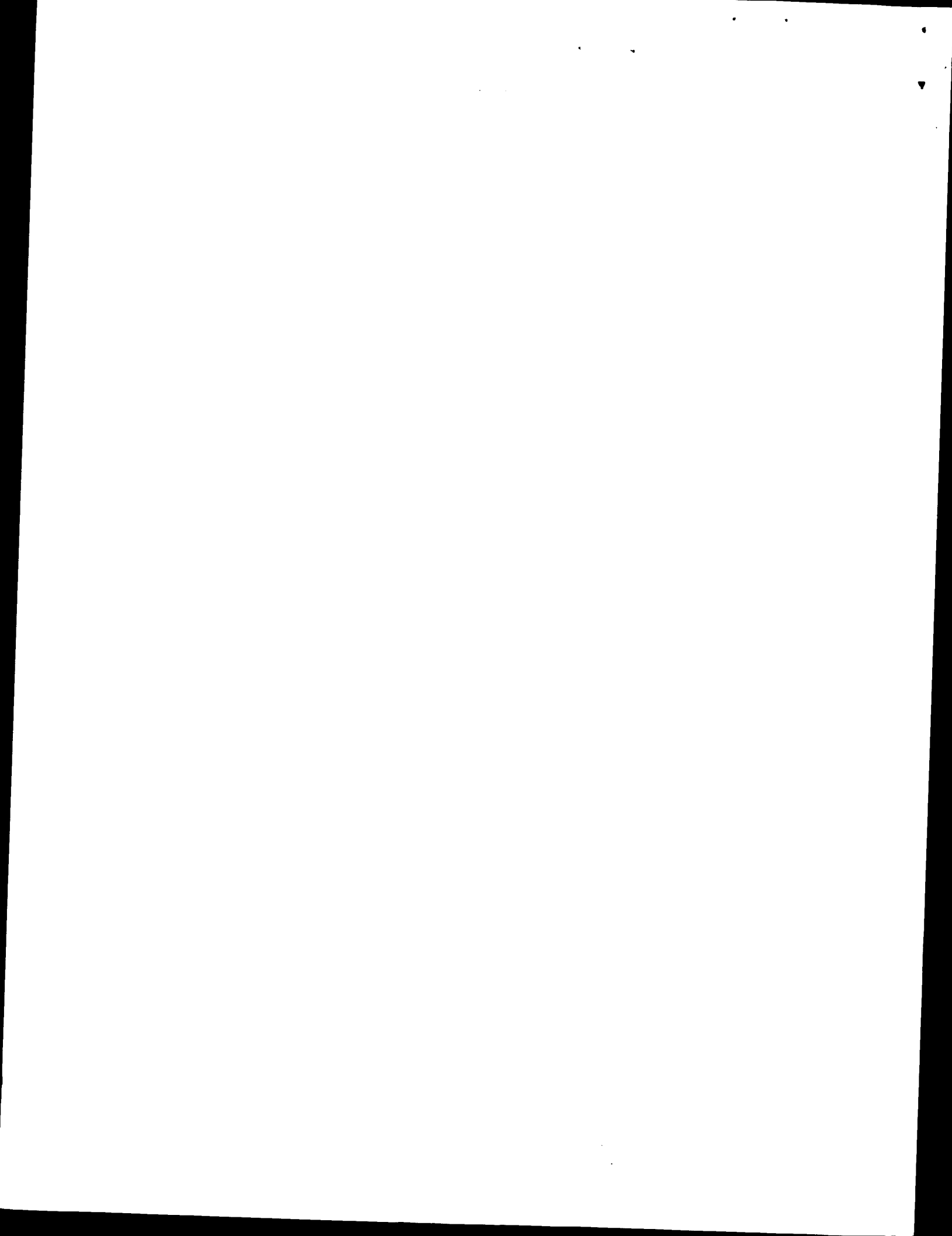
Applicant's or agent's file reference 9806/IPF/PCT	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP99/09465	International filing date (day/month/year) 03 December 1999 (03.12.99)	Priority date (day/month/year) 10 December 1998 (10.12.98)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08G 18/79, 18/22		
Applicant INSTITUT FÜR POLYMERFORSCHUNG DRESDEN E.V.		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of 5 sheets, including this cover sheet.
- ☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).
- These annexes consist of a total of 5 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☒ Certain defects in the international application
- VIII ☒ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 16 March 2000 (16.03.00)	Date of completion of this report 16 March 2001 (16.03.2001)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP99/09465

## I. Basis of the report

### 1. With regard to the elements of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description: \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_ 1-10 \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_  
 pages \_\_\_\_\_
- ☒ the claims: \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of 01 March 2001 (01.03.2001)  
 pages \_\_\_\_\_ 1-23 \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings: \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description: \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

### 2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item. These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

### 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

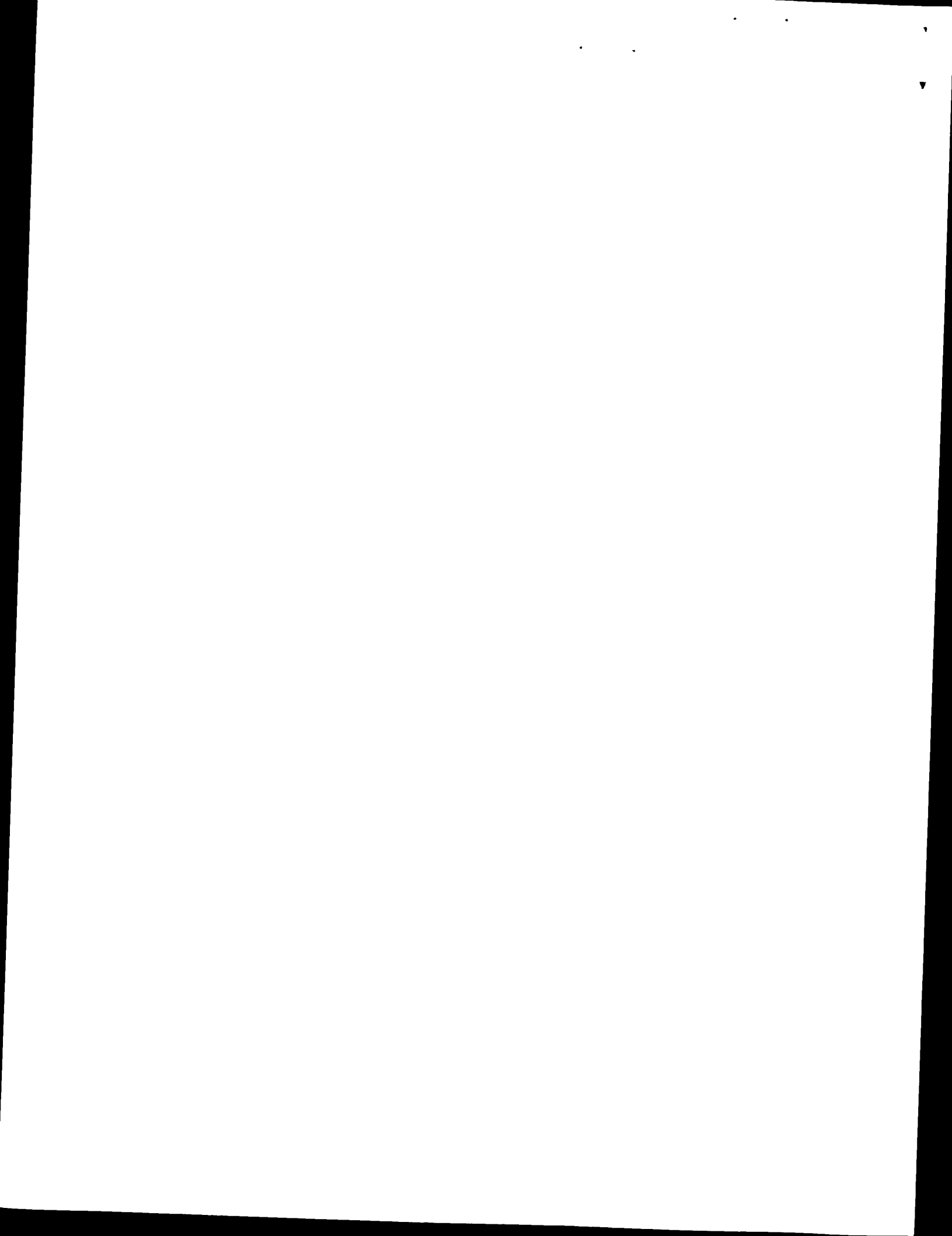
### 4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

### 5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.





# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

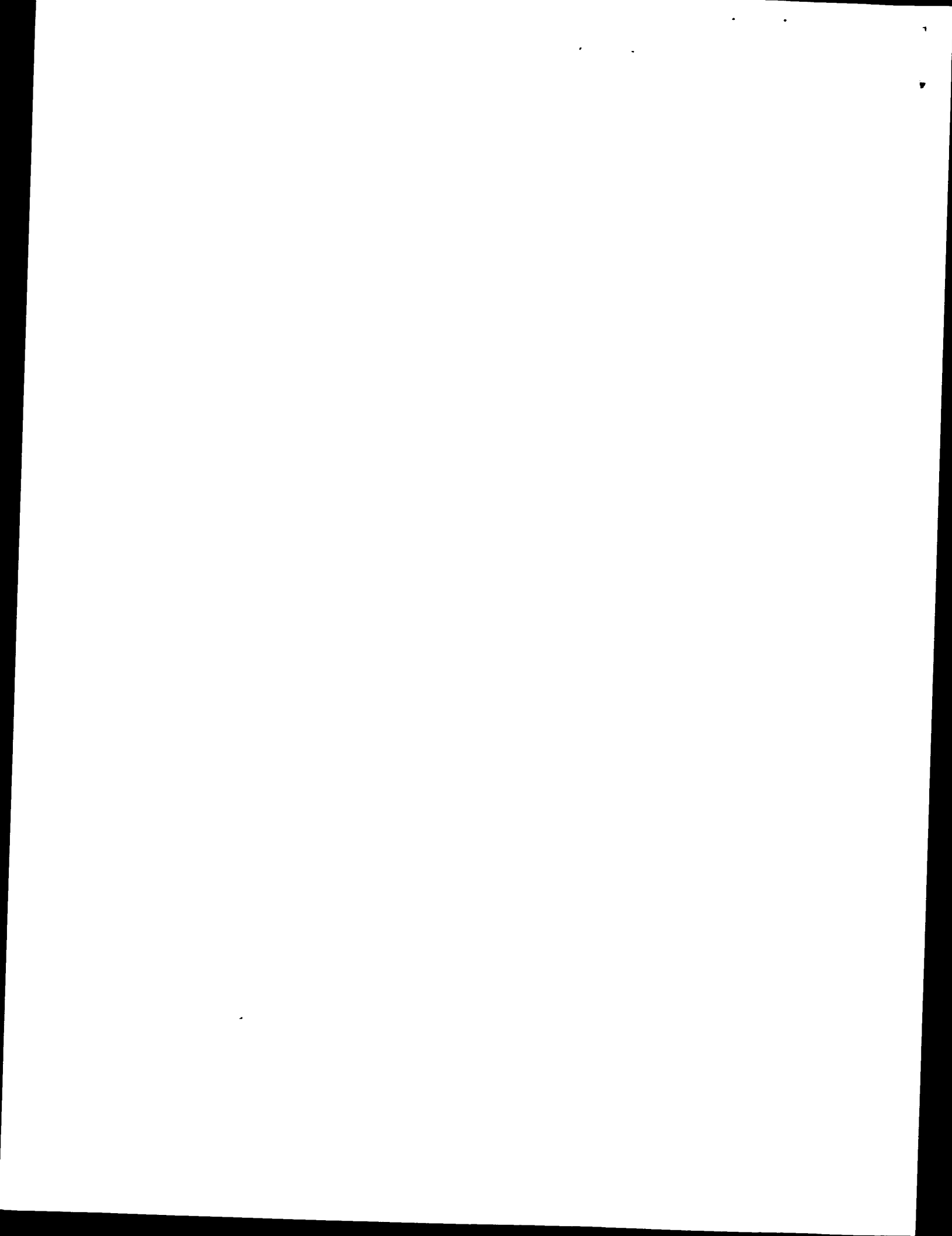
International application No.  
PCT/EP 99/09465

## I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of *(Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.)*:

The applicant is of the opinion that the changes to Claim 1 (the passage "in which (C1) ... or is able to react") are supported by the original disclosure on page 3, paragraph 4, page 7, penultimate and ultimate paragraphs and page 8, first paragraph. The combination of features in this passage cannot be deduced from these sections. Therefore Claim 1 has been inadmissibly widened, and these features cannot be taken into account in the evaluation of novelty and inventive step.

Since alternative claims are not permitted in the PCT process, only the claims in Enclosure 1 will be taken into account.



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 99/09465

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability: citations and explanations supporting such statement

### 1. Statement

Novelty (N)	Claims	4-22	YES
	Claims	1-3, 23	NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	4-22	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-23	YES
	Claims		NO

### 2. Citations and explanations

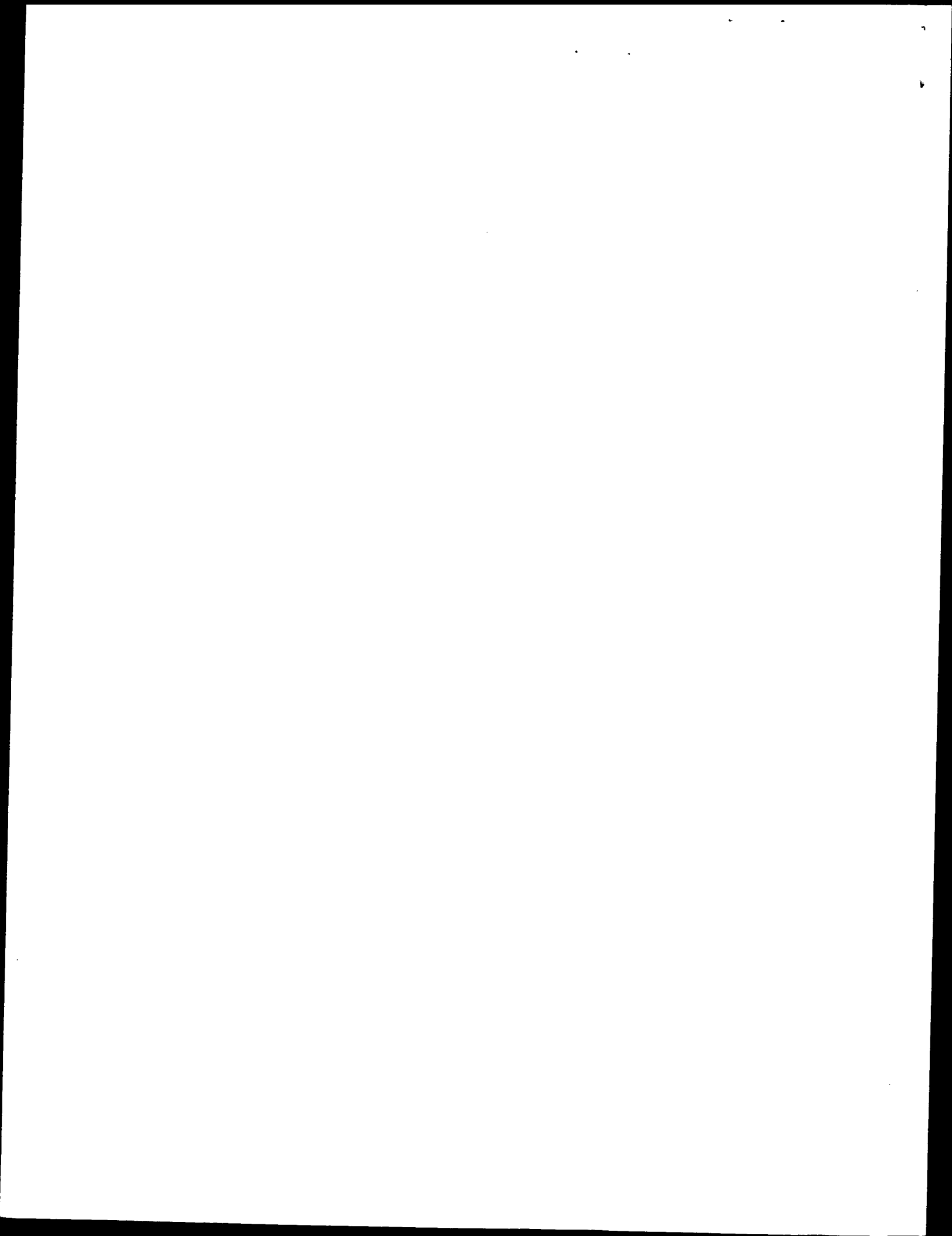
#### Closest prior art

D1: US-A-5 756 634.

#### Novelty

D1 describes a composition for coating substrates, comprising a polymer containing hydroxyl groups, a blocked polyisocyanate based on isophorone diisocyanate containing uretdione groups, and a bismuth carboxylate (an example of a Lewis acid) as a catalyst. The polymer containing OH groups can be a polyester and have a hydroxyl number of 10-300. In this respect, see D1, Claim 1 and column 2, line 22. Since it is not explicitly stated in D1 that this polymer has to contain COOH groups, the absence of COOH groups in the present application is not considered a delimiting factor.

The remaining feature of Claim 1, which concerns molecular weight, is not explicitly disclosed in D1. However, this is a parameter which is linked to the hydroxyl number, and is therefore comparable with prior art. Since the ranges for the hydroxyl numbers overlap significantly, novelty cannot be recognised for the molecular weight either. If



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 99/09465

the applicant wished nevertheless to prove that this feature is not present in D1, this would have to be substantiated with concrete evidence.

Novelty can therefore not be recognised for the subject matter of Claims 1, 2, 3 and 23.

## Inventive step

Until the issue of novelty is clarified, no definitive opinion on inventive step can be given. The applicant is nevertheless invited to show how any novel feature could also be evidence of an inventive step.



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 99/09465

## VII. Certain defects in the international application

The following defects in the form or contents of the international application have been noted:

The claims are incorrectly numbered; there are two different Claim 13s.





**INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT**

International application No.

PCT/EP 99/09465

**VIII. Certain observations on the international application**

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

Claims 2, 13, 17 and 21 are not concisely worded because they contain expressions such as "e.g.", "preferential", "primarily" and "advantageously"; these have no delimiting effect, and are therefore superfluous.



P21009.P02

## IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant :F. LEHMANN et al.

Appl. No :Not Yet Assigned  
(U.S. National Phase of PCT/EP99/09465)

I.A.Filed:December 3, 1999

For :HARDENABLE MATERIALS WHICH CONTAIN URETDIONE GROUPS, ,METHOD  
FOR THE PRODUCTION AND PROCESSING THEREOF, AND THEIR UTILIZATION**COVER LETTER ACCOMPANYING U.S. NATIONAL STAGE PATENT  
APPLICATION FILED UNDER 35 U.S.C. 371  
AND 37 C.F.R. 1.495**Commissioner of Patents and Trademarks  
Washington, D.C. 20231

Sir:

Enclosed is a new National Stage patent application for filing in the U.S. Patent and Trademark Office under 35 U.S.C. 371 and 37 C.F.R. 1.495. The Declaration and Power of Attorney attached thereto are in unexecuted form. Additionally, an English translation of the International Application, as filed, is not being forwarded herewith. A properly executed Declaration and Power of Attorney, and an English language translation of the International Application, as filed, will be filed within the period of time set in a Notification to be mailed by the United States Patent and Trademark Office.

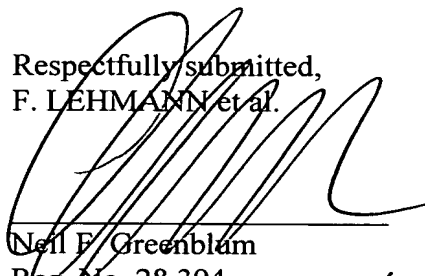
Related to this, a correspondence address is provided in  
the unexecuted Declaration and Power of Attorney, and is as follows:

GREENBLUM & BERNSTEIN, P.L.C.  
1941 Roland Clarke Place  
Reston, Va. 20191




If there any questions pertaining to this National Stage Application, please contact the undersigned below.

Respectfully submitted,  
F. LEHMANN et al.

  
\_\_\_\_\_  
Neil F. Greenblum  
Reg. No. 28,394

June 8, 2001  
GREENBLUM & BERNSTEIN, P.L.C.  
1941 Roland Clarke Place  
Reston, VA 20191  
(703) 716-1191

 33,094



## Zusammenfassung

Härtbare uretdiongruppenhaltige Massen und ein Verfahren zu ihrer Herstellung und Verarbeitung sowie ihre Verwendung

Die Erfindung bezieht sich auf das Gebiet der Chemie und betrifft härtbare Massen, wie sie für die Herstellung von Lacken eingesetzt werden können.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, Massen zur Verfügung zu stellen, die bei niedrigeren Temperaturen in gleicher Zeit aushärten.

Die Aufgabe wird gelöst durch härtbare, uretdiongruppenhaltige Massen, enthaltend (A) eine Bindemittel-Komponente, wobei (A1) diese entweder frei von Carboxylgruppen ist, oder (A2) die Konzentration an Carboxylgruppen kleiner ist als die des Katalysator (C) oder (A3) bei einer höheren Konzentration eine Menge an reaktivem Agens zugegeben wird, und (B) eine Uretdiongruppen aufweisende Polyadditionsverbindung und (C) mindestens einen Lewissäure- Katalysator.

Die Aufgabe wird weiterhin durch ein Verfahren zur Herstellung derartiger Massen gelöst, bei dem die Ausgangsstoffe in Lösung und/oder in Schmelze homogenisiert werden, danach schnell abgekühlt wird und anschließend die Weiterverarbeitung zur vollständigen Vernetzung durchgeführt wird,





## Härtbare uretdiongruppenhaltige Massen und ein Verfahren zu ihrer Herstellung und Verarbeitung sowie ihre Verwendung

Die Erfindung bezieht sich auf das Gebiet der Chemie und betrifft härtbare Massen, wie sie beispielsweise für die Herstellung von Lacken eingesetzt werden können und ein Verfahren zu ihrer Herstellung und Verarbeitung.

Die Blockierung von Isocyanaten mittels Dimerisierung zu Uretdionen stellt eine effektive Methode dar, Isocyanatgruppen vor vorzeitiger Reaktion zu schützen. Ein wichtiges Einsatzgebiet von uretdiongruppenhaltigen Härtern stellt die Beschichtung hitzeresistenter Substrate, speziell mit Pulverlacken, dar.

Pulverlacke sind frei von Lösemitteln und demzufolge weitgehend frei von schädlichen Emissionen und sie besitzen ein sehr hohes Lackieräquivalent. Die Pulverlackierung stellt somit ein sehr umweltfreundliches und wirtschaftliches Beschichtungsverfahren dar.

Beschichtungen auf Polyurethanbasis zeichnen sich durch besondere Licht- und Wetterbeständigkeit und hervorragende optische Eigenschaften aus. Die heute in der Praxis angewandten Polyurethanpulverlacke basieren auf festen Hydroxylgruppen tragenden Polyestern sowie festen aliphatischen bzw. cycloaliphatischen Polyisocyanaten, deren Isocyanatfunktionen durch externe, niedermolekulare Verkappungsmittel vor vorzeitiger Reaktion geschützt werden. Diese Verkappungsmittel entweichen zumindest teilweise während der thermischen Aushärtung des Pulverlackes. Diese Emissionen laufen der prinzipiellen Emissionsfreiheit von Pulverlackformulierungen entgegen und bedingen aus Gründen von Ökologie und Arbeitsplatzhygiene besondere Vorkehrungen.

Durch den Einsatz von uretdiongruppenhaltigen Vernetzern (z.B. DE 23 12 391 OS, EP 045 998 A1, EP 669 353 A1) besteht die Möglichkeit derartige Emissionen nie-



dermolekularer Substanzen zu vermeiden. Aufgrund der geringen Reaktivität der intern blockierten Isocyanatgruppen ist der Einsatz entsprechender uretdiongruppenhaltiger Härter bis zum heutigen Tag begrenzt, da die zur Aushärtung notwendigen Temperaturen größer 160°C zu hoch liegen und/oder die zur Aushärtung notwendige Zeit zu lang ist. Mit Blick auf die Kosten für Energie und die Möglichkeit thermolabile Substrate (z.B. Kunststoffe oder Holz) zu beschichten, ist es notwendig, die Reaktivität derartiger Systeme zu erhöhen.

Es wurden verschiedene Versuche unternommen, die Aushärtung von Polyurethan-Massen auf Basis von uretdiongruppenhaltigen Härtern durch den Einsatz von Katalysatoren zu beschleunigen. Es wurde eine Reihe von Verbindungen vorgeschlagen, wie die aus der Polyurethanchemie bekannten metallorganischen Katalysatoren, wie Zinn(II)-acetat, Zinn(II)-octoat, Zinn(II)-ethylcaproat, Zinn(II)-laurat, Dibutylzinndiacetat, Dibutylzinndilaurat, Dibutylzinnmaleat (z.B. EP 045 994 A1, EP 045 998 A1, WO 91/07452 oder DE 24 20 475), Eisen(III)-chlorid, Zinkchlorid, Zink-2-ethylcaproat und Molybdänglykolat oder tertiäre Amine, wie Triethylamin, Pyridin, Methylpyridin, Benzyldimethylamin, N,N-Endoethylenpiperazin, N-Methylpiperidin, Pentamethyldiethylentriamin, N,N-Dimethylaminocyclohexan und N,N'-Dimethylpiperazin (z.B. EP 639 598 A1).

In der Praxis kommen im allgemeinen zinnorganische Verbindungen der genannten Art zum Einsatz. Die mit diesen Katalysatoren erreichbaren Reaktivitätserhöhungen genügen noch nicht den Ansprüchen an, bei niedrigen Temperaturen aushärtende Massen.

In EP 803 524 A1 werden N,N'-trisubstituierte Amidine enthaltende Verbindungen als Spaltungskatalysatoren beschrieben. Gegenstand dieses Standes der Technik ist ein Polyurethan-Pulverlack, der eine Hydroxylgruppen aufweisende Bindemittelkomponente, eine Uretdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisende Polyadditionsverbindung auf Basis aliphatischer und/oder cycloaliphatischer Diisocyanate, mindestens einen N,N,N'-trisubstituierte Amidinstrukturen enthaltenden Katalysator mit einem Amidinruppengehalt (berechnet als CN<sub>2</sub>; Molekulargewicht = 40) von 12,0 bis 47,0 Gew.-%, gegebenenfalls weitere aus der Polyurethanchemie bekannte Katalysatoren und gegebenenfalls weitere aus der Pulverlacktechnologie bekannte Hilfs- und Zusatzstoffe enthält. Die Hydroxylgruppen aufweisende Bindemittelkomponente wird in dem Pulverlack in solchen Mengen eingesetzt, daß auf jede Hydroxylgruppe der Bindemittelkomponente 0,6 bis 1,4, vorzugsweise 0,8 bis 1,2 Isocyanatgruppen der Uretdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisenden Polyadditionsverbindung entfallen, wobei unter



Isocyanatgruppen die Summe aus in dimerer Form als Uretdiongruppen vorliegenden Isocyanatgruppen und freien Isocyanatgruppen verstanden wird.

In der Veröffentlichung werden mögliche Härtungstemperaturen ab 130°C genannt. Den Ausführungsbeispielen ist jedoch zu entnehmen, daß bei Härtungstemperaturen bis 170°C keine qualitativ hochwertigen Beschichtungen erhalten wurden.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es nun, uretdiongruppenhaltige Massen mit höherer Reaktivität zur Verfügung zu stellen, die bei niedrigeren Temperaturen in gleicher Zeit oder bei gleichen Temperaturen in deutlich kürzerer Zeit als die bislang bekannten, Uretdionhärter enthaltenden Massen aushärten.

Die Aufgabe wird durch die Erfindung nach den Ansprüchen 1 und 11 gelöst. Weiterbildungen sind Gegenstand der Unteransprüche.

Mit der Bereitstellung der erfindungsgemäßen Massen konnte diese Aufgabe gelöst werden. Die erfindungsgemäßen Massen basieren auf der Tatsache, daß unter den erfindungsgemäßen Bedingungen Lewissäure-Katalysatoren, insbesondere metallorganische Verbindungen die Umsetzung von Uretdiongruppen mit Hydroxylgruppen so stark beschleunigen, daß sich mit ihrer Hilfe unter Verwendung der bekannten Uretdionhärter Massen herstellen lassen, die bereits bei vergleichsweise niedrigen Temperaturen in gleicher Zeit oder bei gleichen Temperaturen in deutlich kürzerer Zeit als die bislang bekannten, Uretdionhärter enthaltenden Massen aushärten.

Die Erfindung betrifft bei niedrigen Temperaturen aushärtbare uretdiongruppenhaltige Massen, enthaltend A) eine Hydroxylgruppen aufweisende Bindemittelkomponente, B) eine Uretdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisende Polyadditionsverbindung als Vernetzer, C) mindestens einen aktiven oder reaktiv aktivierbaren Lewissäure-Katalysator, gegebenenfalls D) weitere aus der Polyurethanchemie bekannte Katalysatoren und gegebenenfalls E) an sich bekannte Hilfs- und Zusatzmittel, mit der Maßgabe, daß (A1) die Bindemittelkomponente frei von Carboxylgruppen ist, oder (A2) die Konzentration an Carboxylgruppen kleiner ist als die Konzentration an aktivem Katalysator (C) oder (A3) bei einer höheren Konzentration an Carboxylgruppen gegenüber der eingesetzten Katalysatorkonzentration (C) eine solche Menge an reaktivem Agens, wie z.B. Epoxyverbindung oder Oxazolin zugegeben wird, die zur Blockierung der Menge an Carboxylgruppen notwendig ist, um eine notwendige Konzentration an aktivem Katalysator (C) zu realisieren.



Gegenstand der Erfindung ist auch die Verwendung der Massen zur Beschichtung von hitzeresistenten und thermolabilen Substraten, zur Verkapselung von Bauteilen, als verarbeitbare, härtbare Formmasse und als thermisch härtbare Spachtelmasse.

Bei der, in den erfindungsgemäßen Massen enthaltenen Komponente A) handelt es sich um beliebige Hydroxylgruppen aufweisende Bindemittel mit einer OH-Zahl von 25 bis 400, vorzugsweise von 25 bis 200 und einem mittleren Molekulargewicht von 400 bis 20.000, vorzugsweise von 1.000 bis 10.000, die oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegt. Derartige Bindemittel sind beispielsweise hydroxylgruppenhaltige Polyester, Polyacrylate, Polyether oder Polyurethane aber auch beliebige Mischungen solcher Harze.

Bei der in den erfindungsgemäßen Massen enthaltenen Komponente B) handelt es sich um eine oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegende, Uretdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisende Polyadditionsverbindung auf der Basis aliphatischer und/oder cycloaliphatischer Diisocyanate, insbesondere um solche auf Basis von 1,6-Hexamethylen-diisocyanat (HDI), 1-Isocyanato-3,3,5-trimethyl-5-isocyanatomethylcyclohexan (IPDI), 4,4'-Diisocyanatodicyclohexylmethan, 1,3-Diisocyanato-2(4)-methylcyclohexan oder beliebiger Gemische dieser Diisocyanate, wobei HDI und IPDI bevorzugt sind.

Die Komponente B) wird in den erfindungsgemäßen Massen in solchen Mengen eingesetzt, daß auf jede Hydroxylgruppe der Bindemittelkomponente A) 0,8 bis 2,4, vorzugsweise 0,9 bis 2,2 Isocyanatgruppen der Komponente B) entfallen, wobei unter Isocyanatgruppen der Komponente B) die Summe aus in dimerer Form als Uretdiongruppen vorliegenden Isocyanatgruppen und freien Isocyanatgruppen verstanden wird.

Zur Beschleunigung der Aushärtung enthalten die erfindungsgemäßen Massen Lewisäure-Katalysatoren C), vorzugsweise metallorganische Verbindungen wie z.B. vom Zinn- und/oder Zink- und/oder Cadmium- und/oder Eisen- und/oder Mangan- und/oder Molybdän- und/oder Aluminium- und/oder Kobalt- und/oder Zirkoniumtyp in Abwesenheit oder in Gegenwart von tertiären Amin- und/oder anwesenden oder sich reaktiv bildenden Ammonium- und/oder N,N,N'-trisubstituierte Amidin- und/oder anwesenden oder sich reaktiv bildenden Phosphonium- und/oder Imidazol- und/oder Epoxyverbindungen zur Aktivierung oder Erhöhung der Katalysatorwirkung.





Einsetzbare Katalysatoren C) sind metallorganische Verbindungen der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

R = Alkylrest und

X = Carboxylatrest bedeutet,

sowie metallorganische Verbindungen der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

R = Alkylrest und

Y = Alkoholatrest bedeutet,

sowie metallorganische Verbindungen der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

Z = Acetylacetonatrest und

n = 2 oder 3 bedeutet,

oder beliebige Mischungen solcher metallorganischer Katalysatoren.

Einsetzbare Katalysatoren C) sind auch die Derivate der oben genannten Verbindungen aus Folgereaktionen, wie z.B. Hydrolyse- und Zersetzungsprodukte oder beliebige Mischungen dieser Derivate oder beliebige Mischungen der oben genannten Katalysatoren mit diesen Derivaten.

Die Katalysatoren C) kommen in den erfindungsgemäßen Massen in einer Menge von 0,01 bis 5,0 Gew.-%, vorzugsweise von 0,1 bis 3,0 Gew.-% bezogen auf die Gesamtmenge der Komponenten A) bis D) zum Einsatz.

Gegebenenfalls können in den erfindungsgemäßen Massen als weitere Katalysatoren D) aus der Polyurethanchemie bekannte Verbindungen mitverwendet werden.



Gegebenenfalls können die erfindungsgemäßen Massen an sich bekannte Hilfs- und Zusatzmittel (E) enthalten, wie z.B. Verlaufsmittel, Lichtschutzmittel, UV-Absorber, Pigmente, oder auch Farbstabilisatoren.

Die Homogenisierung der einzelnen Massebestandteile erfolgt durch Mischen der Komponenten in Schmelze, vorzugsweise in einem Laborkneteter, Co-Kneteter oder Extruder. Temperatur und/oder Mischzeit und/oder Drehzahl werden so eingestellt, daß während der Homogenisierung im wesentlichen noch keine Verzweigungs- oder Polymeraufbaureaktionen stattfinden. Im Laborkneteter erfolgt beispielsweise zunächst ein Aufschmelzen der Komponente A. Danach erfolgt schrittweise die Zugabe der Komponenten B und E. Zuletzt erfolgt die Dosierung des Katalysators C oder Katalysatorgemisches C und D, vorzugsweise als Batch. Für die Homogenisierung in einem Co-Kneteter oder im Extruder werden beispielsweise alle Komponenten gründlich gemischt und anschließend im Co-Kneteter oder Extruder homogenisiert. Die Homogenisierung der Komponenten erfolgt bei Massetemperaturen zwischen 50 und 110°C bevorzugt zwischen 70 und 100°C und dauert bis 30 min. Zur Erzielung einer optimalen Durchmischung kann im Co-Kneteter oder im Extruder eine zweimalige Extrusion vorteilhaft sein, wobei die Komponente C gegebenenfalls auch erst im zweiten Extrusionsschritt zugegeben werden kann.

Die homogenisierte Masse wird nachfolgend durch schnelles Abkühlen zum Erstarren gebracht. Dies erfolgt durch Aufbringen der Schmelze auf ein Kühlband oder Einbringen in flüssigen Stickstoff. Die erstarrte Masse wird gebrochen und zerkleinert oder bei Pulverlacken anschließend mit einer Sichtertermühle zu Pulver mit einer Teilchengröße  $< 90 \mu\text{m}$  vermahlen.

Die Homogenisierung der Komponenten kann auch in Lösung erfolgen. Die Homogenisierungstemperatur liegt dabei oberhalb Raumtemperatur und übersteigt im wesentlichen nicht 110°C. Vorteilhafterweise liegt hier mindestens eine der Komponenten (A-E), bevorzugt A und/oder B, in flüssiger Form vor, in der mindestens eine der anderen Komponenten löslich ist. Die homogenisierte Masse wird nachfolgend durch Abschrecken schlagartig auf Temperaturen von mindestens 20 K unter Mischungstemperatur abgekühlt und kann danach bis zur Verarbeitung gelagert werden.

Es sind hochreaktive, thermisch härtbare Systeme herstellbar, bei denen die reaktiven Komponenten einschließlich Katalysatoren und gegebenenfalls verwendungsbedingt anderen Zusatzstoffen beispielsweise durch Schmelzeextrusion homogeni-



siert und anschließend zerkleinert und/oder pulverisiert werden und über eine ausreichend hohe Lagerstabilität verfügen.

Bei Weiterverarbeitung der erfindungsgemäßen Massen zur Beschichtung, können die so hergestellten Pulverlackformulierungen nach üblichen Beschichtungsverfahren, wie z. B. elektrostatischem Pulversprühen oder Wirbelsintern, auf die zu beschichtenden Substrate aufgebracht werden. Die Härtung der Überzüge erfolgt durch Erhitzen auf Temperaturen von 110 bis 200°C, vorzugsweise auf Temperaturen von 120 bis 180°C, bis eine vollständige Vernetzung erreicht und über DSC-Messungen im wesentlichen keine Reaktionswärme mehr nachweisbar ist. Die Temperaturerhöhung erfolgt dabei linear und/oder nichtlinear und/oder die Temperatur wird bei Reaktionstemperatur konstant gehalten. Bei höheren Temperaturen, die den Härtungstemperaturen des Standes der Technik entsprechen, erfolgt eine Härtung in deutlich kürzerer Zeit. Andererseits kann erfindungsgemäß die Härtung bei deutlich niedrigeren Temperaturen erreicht werden. Die Härtung der härtbaren Massen kann beispielsweise in zwei oder mehr aufeinanderfolgenden oder zeitlich getrennten Härtungsstufen bei gleichen oder unterschiedlichen Härtungstemperaturen durchgeführt werden.

Nach der Teilvernetzung der härtbaren Massen oder beispielsweise einer Beschichtung in der ersten Härtungsstufe erfolgt gegebenenfalls nach einer Bearbeitung die Aushärtung in der zweiten Härtungsstufe. Während der Aushärtung ist eine chemische Kopplung von Massen oder Beschichtungen in der Grenzfläche der härtbaren Massen oder Beschichtungen möglich.

Die erste Reaktionsstufe wird bei relativ niedrigen Temperaturen vorzugsweise  $\leq 160$  °C durchgeführt. Wird die eingesetzte Menge an Katalysator (C) gesenkt, ist die Temperatur für die erste Reaktionsstufe zu erhöhen und/oder die Reaktionszeit zu verlängern. Die zweite Reaktionsstufe wird bei mindestens gleichen Reaktionstemperaturen bei deutlich längerer Reaktionszeit oder vorzugsweise bei höheren Temperaturen als die erste Reaktionsstufe in kürzerer Zeit bis zur vollständigen Härtung durchgeführt.

Erfindungsgemäß können beliebige hitzeresistente Substrate, wie beispielsweise Glas oder Metalle, aber auch thermolabile Substrate wie Kunststoffe oder Holz beschichtet werden.

Durch den Einsatz der erfindungsgemäßen Katalysatoren unter den beschriebenen Bedingungen ist die Umsetzung der Uretdiongruppen enthaltenden Härter mit Hydroxylgruppen enthaltenden Bindemittelkomponenten bei vergleichsweise niedrigen Temperaturen möglich.



Ist der Carboxylgruppengehalt der Bindemittelkomponente B) gleich oder größer als der Gehalt an Katalysator C), gelingt es durch Zugabe z.B. von Epoxyverbindung eine ausreichende Menge an Carboxylgruppen zu blockieren, so daß eine katalytisch wirksame Konzentration an aktivem Katalysator C) entsteht.

Zwar ist die Verwendung von Dialkylzinndicarboxylaten als Katalysatoren für die Vernetzung hydroxylgruppenhaltiger Binder mit uretdiongruppenhaltigen Härtern nach dem Stand der Technik bekannt, unter den beschriebenen Bedingungen ist aber keine katalytische Aktivität der beschriebenen metallorganischen Verbindungen auf die Umsetzung der Urettdionfunktion nachweisbar. Die im Vergleich zu unkatalysierten Massen erniedrigten Härtungstemperaturen der im Stand der Technik beschriebenen Urettdiongruppen enthaltende Massen ist vielmehr auf eine Beschleunigung der Umsetzung der thermisch aus den Urettdionringen regenerierten Isocyanatgruppen mit Hydroxylgruppen zurückzuführen.

Im weiteren wird die Erfindung an Ausführungsbeispielen näher erläutert. Dabei ist in Beispiel 1 der Stand der Technik in Form einer unkatalysierten Zusammensetzung dargestellt.

### **Beispiele**

In einem Laborkneteter werden die Verbindungen (A) und (B) homogenisiert. Die Kneterkammertemperatur wird so eingestellt, daß die Massetemperatur 90°C nicht wesentlich überschreitet. Zu dieser Masse werden nacheinander die Verbindungen (E), (D) und (C) zugegeben.

Die Zusammensetzungen der Beispielmischungen sind in Tabelle 1 angegeben. Die Eigenschaften der eingesetzten Komponenten sind in Tabelle 2 angegeben.

Die homogenisierten Massen werden durch Einbringen in flüssigen Stickstoff abgeschreckt. Die abgeschreckten Massen werden in einer Labormühle unter Kühlung zerkleinert und bei 30°C im Vakuum getrocknet. Die Charakterisierung der Proben erfolgt mittels Differential Scanning Calorimetrie (DSC). Die Untersuchungen erfolgten dynamisch in einem Temperaturbereich von 40 bis 260°C bei einer Aufheizgeschwindigkeit von 10 K/min. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3 angegeben.





**Tabelle 1: Zusammensetzung der Beispielmischungen\***

Komponenten/Beispiel	1	2	3	4	5	6	7	8
(A) Hydroxylterminierter Polyester	75,7	75,7	75,7	75,7	75,7	75,7	-	75,7
(A1) Hydroxylterminiertes Polycaprolacton	-	-	-	-	-	-	76,7	-
(A3) Triglycidylisocyanurat	2,9	2,9	2,9	2,9	2,9	-	-	-
(B) Uretdiongruppen enthaltende Polyadditionsverbindung	24,3	24,3	24,3	24,3	24,3	24,3	24,3	24,3
(C) Dibutylzinndilaurat	-	1,0	-	-	-	-	-	-
(C) Dibutylzinndibutylat	-	-	1,0	-	-	-	-	-
(C) Zinkacetylacetonat	-	-	-	1,0	1,0	1,0	1,0	3,0
(D) Benzyltrimethylammoniumchlorid	-	-	-	-	1,0	1,0	-	-
(E) Acronal 4F	-	-	-	-	-	0,6	-	-
(E) Weißpigment	-	-	-	-	-	0,6	-	-

\* alle Angaben sind in Gew.-%

**Tabelle 2: Eigenschaften der in den Beispielen eingesetzten Komponenten**

Komponente	OH-Zahl	COOH-Zahl	Isocyanat-Equivalent	T <sub>m</sub> (°C)
Hydroxylterminierter Polyester	30	≤5	-	56
Hydroxylterminiertes Polycaprolacton	56	≤0,1	-	40-50
Triglycidylisocyanurat	-	-	-	98
Uretdiongruppen enthaltende Polyadditionsverbindung	-	-	310	54

**Tabelle 3: Ergebnisse der thermischen Untersuchungen (dynamisch)**

Probennummer	1	2	3	4	5	6	7	8
Beginn der Reaktion T <sub>onset</sub> (°C)	184,2	144,0	134,9	131,0	128,2	123,6	122,4	119,1
Reaktionsmaximum T <sub>max</sub> (°C)	211,8	164,6	160,3	145,3	145,2	141,6	139,4	141,8



**Tabelle 4: Ergebnisse der thermischen Untersuchungen (isotherm)**

Beispiel	1	2	3	4	5
Reaktionstemperatur in °C	150	150	150	130	130
Reaktionszeit (min) bis zur weitgehend vollst. Vernetzung	- *)	17	16	12	12

\*) keine nennenswerte Vernetzung eingetreten



## Patentansprüche

1. Härtbare, uretdiongruppenhaltige Massen, enthaltend (A) eine, endständige und/oder seitenständige Hydroxylgruppen aufweisende, lineare oder verzweigte Bindemittel-Komponente mit einer OH- Zahl von 25 bis 400 und einem mittleren Molekulargewicht von 400 bis 20.000, die oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegt, wobei (A1) entweder die Bindemittelkomponente frei von Carboxylgruppen ist, oder (A2) die Konzentration an Carboxylgruppen kleiner ist als die Konzentration an aktivem Katalysator (C) oder (A3) bei einer höheren Konzentration an Carboxylgruppen gegenüber der eingesetzten Katalysatorkonzentration (C) eine solche Menge reaktivem Agens zugegeben wird, die zur Blockierung der Menge an Carboxylgruppen notwendig ist, um eine notwendige Konzentration an aktivem Katalysator (C) zu realisieren, und (B) eine oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegende, Uretdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisende Polyadditionsverbindung auf der Basis aliphatischer und/oder cycloaliphatischer Diisocyanate und (C) mindestens einen aktiven oder einen reaktiv aktivierbaren Lewissäure- Katalysator und (D) weitere aus der Urethanchemie bekannte Katalysatoren und (E) an sich bekannte Hilfs- und Zusatzmittel, wobei D) und E) zugegeben sein können.

2. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente A) aus einer Hydroxylgruppen aufweisenden polymeren Verbindung besteht, wie z.B. Polyacrylate, Polyether, Polyester und Oligo- bzw. Polyepoxide.

3. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente B) aus einer Uretdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisenden Polyadditionsverbindung auf Basis von Isophorondiisocyanat und/oder Hexamethylen-diisocyanat besteht.

4. Massen gemäß Anspruch 1, bei dem das reaktive Agens eine Epoxyverbindung und/oder eine Oxazolinverbindung ist.

5. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente C) aus mindestens einem metallorganischen Katalysator der allgemeinen Formel



in welcher



Me = Metall

R = Alkylrest und

X = Carboxylatrest bedeutet,  
besteht.

6. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente C) aus mindestens einem metallorganischen Katalysator der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

R = Alkylrest und

Y = Alkoholatrest bedeutet,  
besteht.

7. Härtbare Masse gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponente C) aus mindestens einem metallorganischen Katalysator der allgemeinen Formel



in welcher:

Me = Metall

Z = Acetylacetonatrest und

n = 2 oder 3 bedeutet,  
besteht.

8. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente C) aus mindestens einem Derivat eines metallorganischen Katalysators gemäß den Ansprüchen 5 bis 7 besteht.

9. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente C) aus beliebigen Mischungen der genannten metallorganischen Katalysatoren und Derivate gemäß der Ansprüche 5 bis 8 besteht.

10. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente D) aus nucleophilen Substanzen besteht.

11. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente A) eine OH-Zahl von 25 bis 200 und ein mittleres Molekulargewicht von 1.000 bis 10.000 aufweist.





12. Verfahren zur Herstellung von härtbaren, uretdiongruppenhaltigen Massen nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 11, bei dem als Ausgangsstoffe unvernetzte Massen, bestehend aus (A) einer, endständige und/oder seitenständige Hydroxylgruppen aufweisenden, linearen oder verzweigten Bindemittel-Komponente mit einer OH-Zahl von 25 bis 400 und einem mittleren Molekulargewicht von 400 bis 20.000, die oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegt, wobei (A1) entweder die Bindemittelkomponente frei von Carboxylgruppen ist, oder (A2) die Konzentration an Carboxylgruppen kleiner ist als die Konzentration an aktivem Katalysator (C) oder (A3) bei einer höheren Konzentration an Carboxylgruppen gegenüber der eingesetzten Katalysatorkonzentration (C) eine solche Menge an reaktivem Agens zugegeben wird, die zur Blockierung der Menge an Carboxylgruppen notwendig ist, um eine notwendige Konzentration an aktivem Katalysator (C) zu realisieren, und (B) einer oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegenden, Urettdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisenden Polyadditionsverbindung auf der Basis aliphatischer und/oder cycloaliphatischer Diisocyanate und (C) mindestens einem aktiven oder einem reaktiv aktivierbaren Lewissäure- Katalysator und (D) weiteren, aus der Urethanchemie bekannte Katalysatoren und (E) an sich bekannten Hilfs- und Zusatzmitteln, wobei D) und E) zugegeben sein können, eingesetzt werden, diese Ausgangsstoffe in Lösung und/oder in Schmelze längstens bis eine Molmassenerhöhung nachweisbar ist, homogenisiert werden, danach die Lösung oder die Schmelze schnell unterhalb der Reaktionstemperatur der Masse abgekühlt wird und anschließend eine Lagerung der härtbaren Masse erfolgen kann und danach oder an die Abkühlung anschließend die Weiterverarbeitung der härtbaren Masse zur vollständigen Vernetzung durchgeführt wird, wobei die Temperatur solange linear und/oder nichtlinear erhöht und/oder bei Reaktionstemperatur konstant gehalten wird, bis über DSC-Messungen im wesentlichen keine Reaktionswärme mehr nachweisbar ist.

13. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen in Schmelze in einem Laborkneteter oder einem Co-Kneteter und/oder einem Extruder erfolgt.

13. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen bei Temperaturen kleiner gleich  $110^{\circ}\text{C}$ , bevorzugt zwischen  $50$  und  $100^{\circ}\text{C}$  erfolgt.



14. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen bis 30 min durchgeführt wird.

15. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Abkühlung unter die Reaktionstemperatur nach der Homogenisierung der härtbaren Massen durch Einbringen der Schmelze in flüssigen Stickstoff oder durch Aufbringen auf ein Kühlband erfolgt.

16. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem mindestens eine der Komponenten (A) bis (E), bevorzugt (A) und (B) in flüssiger Form eingesetzt wird.

17. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Temperatur in einem Bereich von bevorzugt 20 K oberhalb der Homogenisierungstemperatur bis 200°C, vorzugsweise bis 180°C, linear und/oder nichtlinear angehoben wird.

18. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Zugabe des Katalysators oder Katalysatorgemisches (C,D) als Batch nach der Homogenisierung der Komponenten A, B und E bei abgesenkten Temperaturen durchgeführt wird.

19. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen in Schmelze erfolgt.

20. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen ein- oder mehrstufig in Schmelze durchgeführt wird, wobei der Katalysator bei einstufiger Homogenisierung bei tieferen Temperaturen und bei mehrstufiger Homogenisierung erst in der zweiten Stufe bei tieferen Temperaturen zudosiert wird.

21. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Temperatur stufenweise erhöht wird und die Temperatur nach jedem Erhöhungsschritt für eine Zeitspanne von 1 bis 60 Minuten, vorteilhafterweise von 5 bis 30 Minuten, konstant gehalten wird.

22. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Temperatur in zwei Stufen erhöht wird, wobei die zweite Temperaturerhöhung nach der Haltezeit unmittelbar darauffolgend oder zeitlich später durchgeführt wird.



23. Verwendung der Massen nach den Ansprüchen 1 bis 11 zur Beschichtung von hitzeresistenten und thermolabilen Substraten, zur Verkapselung von Bauteilen, als verarbeitbare, härtbare Formmasse und als thermisch härtbare Spachtelmasse.



**PCT-ANTRAG**

Original (für EINREICHUNG) - gedruckt am 02.12.1999 03:19:53 PM

0	Vom Anmeldeamt auszufüllen	
0-1	Internationales Aktenzeichen.	
0-2	Internationales Anmeldedatum	
0-3	Name des Anmeldeamts und "PCT International Application"	
0-4 0-4-1	Formular - PCT/RO/101 PCT-Antrag erstellt durch Benutzung von	PCT-EASY Version 2.90 (aktualisiert 15.10.1999)
0-5	Antragsersuchen Der Unterzeichnete beantragt, daß die vorliegende internationale Anmeldung nach dem Vertrag über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens behandelt wird	
0-6	(Vom Anmelder gewähltes) Anmeldeamt	Europäisches Patentamt (EPA) (RO/EP)
0-7	Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts	9806/IPF/PCT
I	Bezeichnung der Erfindung	HÄRTBARE URETDIONGRUPPENHALTIGE MASSE UND VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG UND VERARBEITUNG SOWIE IHRE VERWENDUNG
II	Anmelder	nur Anmelder
II-1	Diese Person ist	Alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von
II-2	Anmelder für	US
II-4	Name	INSTITUT FÜR POLYMERFORSCHUNG DRESDEN E.V.
II-5	Anschrift:	Frau Mildner Hohe Str. 6 D-01069 Dresden Deutschland
II-6	Staatsangehörigkeit (Staat)	DE
II-7	Sitz/Wohnsitz (Staat)	DE
II-8	Telefonnr.	0351/4658394
II-9	Telefaxnr.	0351/4658284

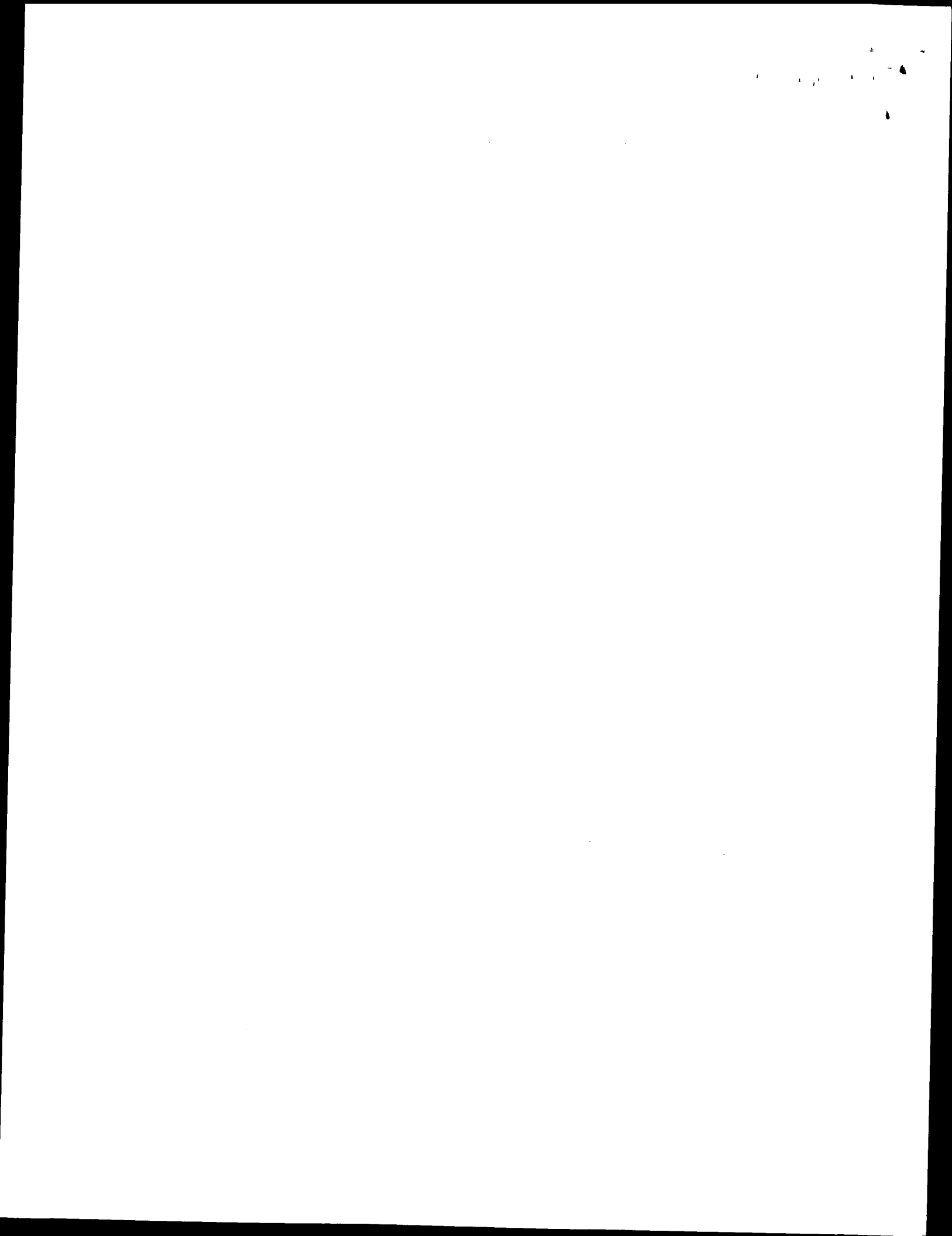




## PCT-ANTRAG

Original (für EINREICHUNG) - gedruckt am 02.12.1999 03:19:53 PM

III-1	<b>Anmelder und/oder Erfinder</b>	<b>Anmelder und Erfinder</b> <b>Nur US</b> <b>LEHMANN, Frank</b> <b>Görlitzer Str. 37</b> <b>D-01099 Dresden</b> <b>Deutschland</b> <b>DE</b> <b>DE</b>
III-1-1	Diese Person ist	
III-1-2	Anmelder für	
III-1-4	Name (FAMILIENNAME, Vorname)	
III-1-5	Anschrift:	
III-1-6	Staatsangehörigkeit (Staat)	
III-1-7	Sitz/Wohnsitz (Staat)	
III-2	<b>Anmelder und/oder Erfinder</b>	<b>Anmelder und Erfinder</b> <b>Nur US</b> <b>GEDAN-SMOLKA, Michaela</b> <b>Ponikauer Str. 1</b> <b>D-01990 Ortrand</b> <b>Deutschland</b> <b>DE</b> <b>DE</b>
III-2-1	Diese Person ist	
III-2-2	Anmelder für	
III-2-4	Name (FAMILIENNAME, Vorname)	
III-2-5	Anschrift:	
III-2-6	Staatsangehörigkeit (Staat)	
III-2-7	Sitz/Wohnsitz (Staat)	
III-3	<b>Anmelder und/oder Erfinder</b>	<b>Anmelder und Erfinder</b> <b>Nur US</b> <b>LEHMANN, Dieter</b> <b>Elsa-Brandström-Weg 7</b> <b>D-01646 Coswig</b> <b>Deutschland</b> <b>DE</b> <b>DE</b>
III-3-1	Diese Person ist	
III-3-2	Anmelder für	
III-3-4	Name (FAMILIENNAME, Vorname)	
III-3-5	Anschrift:	
III-3-6	Staatsangehörigkeit (Staat)	
III-3-7	Sitz/Wohnsitz (Staat)	
IV-1	<b>Anwalt oder gemeinsamer Vertreter; oder besondere Zustellanschrift</b> Die unten bezeichnete Person ist/wird hiermit bestellt, um den (die) Anmelder vor den internationalen Behörden zu vertreten, und zwar als:	<b>Anwalt</b>  <b>RAUSCHENBACH, Marion</b> <b>PF 27 01 75</b> <b>D-01172 Dresden</b> <b>Deutschland</b> <b>0351/4033172</b> <b>0351/4033172</b> <b>M.RauPAT@t-online.de</b>
IV-1-1	Name (FAMILIENNAME, Vorname)	
IV-1-2	Anschrift:	
IV-1-3	Telefonnr.	
IV-1-4	Telefaxnr.	
IV-1-5	e-mail	



## PCT-ANTRAG


Original (für EINREICHUNG) - gedruckt am 02.12.1999 03:19:53 PM

V	Bestimmung von Staaten	
V-1	Regionales Patent (andere Schutzrechtsarten oder Verfahren sind ggf. in Klammern nach der (den) betreffenden Bestimmung(en) angegeben)	<p>AP: GH GM KE LS MW SD SL SZ TZ UG ZW und jeder weitere Staat, der Mitgliedstaat des Harare-Protokolls und Vertragsstaat des PCT ist</p> <p>EA: AM AZ BY KG KZ MD RU TJ TM und jeder weitere Staat, der Mitgliedsstaat des Eurasischen Patentübereinkommens und Vertragsstaat des PCT ist</p> <p>EP: AT BE CH&amp;LI CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LU MC NL PT SE und jeder weitere Staat, der Mitgliedsstaat des Europäischen Patentübereinkommens und Vertragsstaat des PCT ist</p> <p>OA: BF BJ CF CG CI CM GA GN GW ML MR NE SN TD TG und jeder weitere Staat, der Mitgliedstaat der OAPI und Vertragsstaat des PCT ist</p>
V-2	Nationales Patent (andere Schutzrechtsarten oder Verfahren sind ggf. in Klammern nach der (den) betreffenden Bestimmung(en) angegeben)	<p>AE AL AM AT AU AZ BA BB BG BR BY CA CH&amp;LI CN CR CU CZ DE DK DM EE ES FI GB GD GE GH GM HR HU ID IL IN IS JP KE KG KP KR KZ LC LK LR LS LT LU LV MA MD MG MK MN MW MX NO NZ PL PT RO RU SD SE SG SI SK SL TJ TM TR TT TZ UA UG US UZ VN YU ZA ZW</p>
V-5	<p>Erklärung bzgl. vorsorglicher Bestimmungen</p> <p>Zusätzlich zu den unter Punkten V-1, V-2 and V-3 vorgenommenen Bestimmungen nimmt der Anmelder nach Regel 4.9 Absatz b auch alle anderen nach dem PCT zulässigen Bestimmungen vor mit Ausnahme der nachstehend unter Punkt V-6 angegebenen Staaten. Der Anmelder erklärt, daß diese zusätzlichen Bestimmungen unter dem Vorbehalt einer Bestätigung stehen und jede zusätzliche Bestimmung, die vor Ablauf von 15 Monaten ab dem Prioritätsdatum nicht bestätigt wurde, nach Ablauf dieser Frist als vom Anmelder zurückgenommen gilt.</p>	
V-6	Staaten, die von der Erklärung über vorsorgliche Bestimmungen ausgenommen werden	KEINE
VI-1	Priorität einer früheren nationalen Anmeldung beansprucht	
VI-1-1	Anmeldedatum	10 Dezember 1998 (10.12.1998)
VI-1-2	Aktenzeichen	198 56 878.9
VI-1-3	Staat	DE
VII-1	Gewählte Internationale Recherchenbehörde	Europäisches Patentamt (EPA) (ISA/EP)



## PCT-ANTRAG

Original (für EINREICHUNG) - gedruckt am 02.12.1999 03:19:53 PM

VIII	Kontrollliste	Anzahl der Blätter	Elektronische Datei(en) beigelegt
VIII-1	Antrag	4	-
VIII-2	Beschreibung	10	-
VIII-3	Ansprüche	5	-
VIII-4	Zusammenfassung	1	9807zus.txt
VIII-5	Zeichnung(en)	0	-
VIII-7	INSGESAMT	20	
	Beigelegte Unterlagen	Unterlage(n) in Papierform beigelegt	Elektronische Datei(en) beigelegt
VIII-8	Blatt für die Gebührenberechnung	✓	-
VIII-16	PCT-EASY-Diskette	-	Diskette
VIII-18	Nr. der Abb. der Zeichn., die mit der Zusammenf. veröffentlicht werden soll		
VIII-19	Sprache der int. Anmeldung	Deutsch	
IX-1	Unterschrift des Anmelders oder Anwalts		
IX-1-1	Name (FAMILIENNAME, Vorname)	RAUSCHENBACH, Marion	

## VOM ANMELDEAMT AUSZUFÜLLEN

10-1	Datum des tatsächlichen Eingangs dieser internationalen Anmeldung	
10-2	Zeichnung(en):	
10-2-1	Eingegangen	
10-2-2	Nicht eingegangen	
10-3	Geändertes Eingangsdatum aufgrund nachträglich, jedoch fristgerecht eingeg. Unterlage(n) oder Zeichnung(en) zur Vervollständigung dieser int. Anmeldung	
10-4	Datum des fristgerechten Eingangs der Berichtigung nach PCT Artikel 11(2)	
10-5	Internationale Recherchenbehörde	ISA/EP
10-6	Übermittlung des Recherchenexemplars bis zur Zahlung der Recherchegebühr aufgeschoben	

## VOM INTERNATIONALEN BÜRO AUSZUFÜLLEN

11-1	Datum des Eingangs des Aktenexemplars beim Internationalen Büro	
------	---	--



VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM  
GEBIET DES PATENTWESENS

PAT 191 li  
27. März 2001

Absender: MIT DER INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN  
PRÜFUNG BEAUFTRAGTE BEHÖRDE

An:

Rauschenbach, Marion  
Postfach 27 01 75  
D-01172 Dresden  
ALLEMAGNE

EINGEGANGEN  
17. MRZ. 2001  
Rauschenbach

PCT

MITTEILUNG ÜBER DIE ÜBERSENDUNG  
DES INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN  
PRÜFUNGSBERICHTS  
(Regel 71.1 PCT)

Absendedatum  
(Tag/Monat/Jahr) 16.03.2001

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts  
9806/IPF/PCT

WICHTIGE MITTEILUNG

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP99/09465

Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr)  
03/12/1999

Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)  
10/12/1998

Anmelder

INSTITUT FÜR POLYMERFORSCHUNG DRESDENE.V. et al.

1. Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß ihm die mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde hiermit den zu der internationalen Anmeldung erstellten internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen, übermittelt.
2. Eine Kopie des Berichts wird - gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen - dem Internationalen Büro zur Weiterleitung an alle ausgewählten Ämter übermittelt.
3. Auf Wunsch eines ausgewählten Amtes wird das Internationale Büro eine Übersetzung des Berichts (jedoch nicht der Anlagen) ins Englische anfertigen und diesem Amt übermitteln.

4. ERINNERUNG

Zum Eintritt in die nationale Phase hat der Anmelder vor jedem ausgewählten Amt innerhalb von 30 Monaten ab dem Prioritätsdatum (oder in manchen Ämtern noch später) bestimmte Handlungen (Einreichung von Übersetzungen und Entrichtung nationaler Gebühren) vorzunehmen (Artikel 39 (1)) (siehe auch die durch das Internationale Büro im Formblatt PCT/IB/301 übermittelte Information).

Ist einem ausgewählten Amt eine Übersetzung der internationalen Anmeldung zu übermitteln, so muß diese Übersetzung auch Übersetzungen aller Anlagen zum internationalen vorläufigen Prüfungsbericht enthalten. Es ist Aufgabe des Anmelders, solche Übersetzungen anzufertigen und den betroffenen ausgewählten Ämtern direkt zuzuleiten.

Weitere Einzelheiten zu den maßgebenden Fristen und Erfordernissen der ausgewählten Ämter sind Band II des PCT-Leitfadens für Anmelder zu entnehmen.

Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung  
beauftragten Behörde



Europäisches Patentamt  
D-80298 München  
Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d  
Fax: +49 89 2399 - 4465

Bevollmächtigter Bediensteter

Bauer-Kober, S

Tel. +49 89 2399-8014







# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/09465

## I. Grundlage des Berichts

1. Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten.*):

**Beschreibung, Seiten:**

1-10                      ursprüngliche Fassung

**Patentansprüche, Nr.:**

1-23                      eingegangen am                      03/03/2001    mit Schreiben vom    01/03/2001

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,              Seiten:
- ☐ Ansprüche,                  Nr.:
- ☐ Zeichnungen,              Blatt:



# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/09465

5. ☒ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).*  
siehe Beiblatt

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:  
siehe Beiblatt

## V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

### 1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	4-22
	Nein: Ansprüche	1-3, 23
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	4-22
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-23
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen  
siehe Beiblatt

## VII. Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist:  
siehe Beiblatt

## VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:  
siehe Beiblatt



Fortsetzung des Absatzes I (5)

Die Anmelderin ist der Meinung, daß die Änderungen im Anspruch 1 (die Passage "wobei (C1) ..... oder reaktivierbar sind") durch die ursprüngliche Offenbarung auf Seite 3, 4. Absatz, Seite 7, vorletzter und letzter Absatz und Seite 8, 1. Absatz gestützt seien. Die Kombination von Merkmalen in dieser Passage läßt sich nicht von diesen Stellen ableiten. Der Anspruch 1 ist daher unzulässig erweitert. Die Merkmale können weiterhin nicht bei der Bewertung der Neuheit und der erfinderischen Tätigkeit berücksichtigt werden.

Fortsetzung des Absatzes I (6)

Da Hilfsanträge im PCT Verfahren nicht zulässig sind, werden nur die Ansprüche in der Anlage 1 berücksichtigt.

Fortsetzung des Absatzes V

Nächstliegender Stand der Technik

D1 = US-A-5 756 634.

Neuheit

In D1 wird eine Zusammensetzung zur Beschichtung von Substraten beschrieben, die ein Hydroxylgruppen aufweisendes Polymer, ein Uretdiongruppen aufweisendes blockiertes Polyisocyanat auf der Basis von Isophorondiisocyanat, und ein Wismut Carboxylat (ein Beispiel für eine Lewissäure) als Katalysator, enthält. Das OH-Gruppen aufweisende Polymer kann ein Polyester sein und eine OH-Zahl von 10-300 aufweisen. In diesem Zusammenhang, siehe D1, Anspruch 1 und Spalte 2, Zeile 22. Da nicht explizit aus D1 hervorgeht, daß dieses Polymer COOH-Gruppen enthalten muß, kann die Abwesenheit von COOH-Gruppen in der vorliegenden Anmeldung nicht als abgrenzend angesehen werden.

Das verbleibende Merkmal des Anspruchs 1, das das Molekulargewicht betrifft, ist nicht explizit im Dokument D1 offenbart. Es handelt sich dabei jedoch um einen Parameter,



der mit der OH-Zahl verknüpft und daher mit dem Stand der Technik vergleichbar ist. Da sich die Bereiche für die OH-Zahl weitgehend überschneiden, kann folglich die Neuheit für das Molekulargewicht ebenfalls nicht anerkannt werden. Falls der Anmelder dennoch nachweisen wollte, daß dieses Merkmal nicht in D1 vorhanden ist, sollte dies durch konkrete Beweise belegt werden.

Daher kann die Neuheit für den Gegenstand der Ansprüche 1, 2, 3 und 23 nicht anerkannt werden.

#### Erfinderische Tätigkeit

Bis zur Klärung der Neuheitsfrage kann keine endgültige Meinung zur erfinderischen Tätigkeit abgegeben werden. Trotzdem wird die Anmelderin gebeten zu zeigen, in welcher Hinsicht ein neues Merkmal auch ein Indiz für eine erfinderische Tätigkeit sein könnte.

#### Fortsetzung des Absatzes VII

Die Ansprüche sind falsch numeriert; es bestehen nämlich zwei verschiedene Ansprüche 13.

#### Fortsetzung des Absatzes VIII

Die Ansprüche 2, 13, 17 und 21 sind nicht knapp gefaßt, weil sie Ausdrücke wie "z.B.", "bevorzugt", "vorzugsweise", und "vorteilhafterweise" enthalten; letztere haben keine einschränkende Wirkung, sind also überflüssig.





ANLAGE

## Anlage 1

Geänderte Patentansprüche zur PCT/EP99/09465

## Patentansprüche

1. Härtbare, uretdiongruppenhaltige Massen, enthaltend (A) eine, endständige und/oder seitenständige Hydroxylgruppen aufweisende, lineare oder verzweigte Bindemittel-Komponente mit einer OH- Zahl von 25 bis 400 und einem mittleren Molekulargewicht von 400 bis 20.000, die oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegt, wobei (A1) entweder die Bindemittelkomponente frei von Carboxylgruppen ist, oder (A2) die Konzentration an Carboxylgruppen kleiner ist als die Konzentration an aktivem Katalysator (C) oder (A3) bei einer höheren Konzentration an Carboxylgruppen gegenüber der eingesetzten Katalysatorkonzentration (C) eine solche Menge reaktivem Agens zugegeben wird, die zur Blockierung der Menge an Carboxylgruppen notwendig ist, um eine notwendige Konzentration an aktivem Katalysator (C) zu realisieren, und (B) eine oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegende, Urettdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisende Polyadditionsverbindung auf der Basis aliphatischer und/oder cycloaliphatischer Diisocyanate und (C) mindestens einen aktiven oder einen reaktiv aktivierbaren Lewissäure-Katalysator, wobei (C1) im Fall nach (A1) und (A2) der Einsatz von Lewissäure-Carboxylaten als Katalysator ausgeschlossen ist und wobei (C2) im Fall nach (A3) auch Lewissäure-Carboxylate mit eingeschlossen sind, die durch alkylierende Agenzien zum Carbonsäureester und unter Lewissäure-Alkoholat-Bildung reaktiviert oder reaktivierbar sind und (D) weitere aus der Urethanchemie bekannte Katalysatoren und (E) an sich bekannte Hilfs- und Zusatzmittel, wobei D) und E) zugegeben sein können.

2. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente A) aus einer Hydroxylgruppen aufweisenden polymeren Verbindung besteht, wie z.B. Polyacrylate, Polyether, Polyester und Oligo- bzw. Polyepoxide.

3. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente B) aus einer Urettdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisenden Polyadditionsverbindung auf Basis von Isophorondiisocyanat und/oder Hexamethylen-diisocyanat besteht.



4. Massen gemäß Anspruch 1, bei dem das reaktive Agens eine Epoxyverbindung und/oder eine Oxazolinverbindung ist.

5. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente C) aus mindestens einem metallorganischen Katalysator der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

R = Alkylrest und

X = Carboxylatrest bedeutet,  
besteht.

6. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente C) aus mindestens einem metallorganischen Katalysator der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

R = Alkylrest und

Y = Alkoholatrest bedeutet,  
besteht.

7. Härtbare Masse gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponente C) aus mindestens einem metallorganischen Katalysator der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

Z = Acetylacetonatrest und

n = 2 oder 3 bedeutet,  
besteht.

8. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente C) aus mindestens einem Derivat eines metallorganischen Katalysators gemäß den Ansprüchen 5 bis 7 besteht.

9. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente C) aus beliebigen Mischungen der genannten metallorganischen Katalysatoren und Derivate gemäß der Ansprüche 5 bis 8 besteht.



10. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente D) aus nucleophilen Substanzen besteht.
11. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente A) eine OH-Zahl von 25 bis 200 und ein mittleres Molekulargewicht von 1.000 bis 10.000 aufweist.
12. Verfahren zur Herstellung von härtbaren, uretdiongruppenhaltigen Massen nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 11, bei dem als Ausgangsstoffe unvernetzte Massen, bestehend aus (A) einer, endständige und/oder seitenständige Hydroxylgruppen aufweisenden, linearen oder verzweigten Bindemittel-Komponente mit einer OH-Zahl von 25 bis 400 und einem mittleren Molekulargewicht von 400 bis 20.000, die oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegt, wobei (A1) entweder die Bindemittelkomponente frei von Carboxylgruppen ist, oder (A2) die Konzentration an Carboxylgruppen kleiner ist als die Konzentration an aktivem Katalysator (C) oder (A3) bei einer höheren Konzentration an Carboxylgruppen gegenüber der eingesetzten Katalysatorkonzentration (C) eine solche Menge an reaktivem Agens zugegeben wird, die zur Blockierung der Menge an Carboxylgruppen notwendig ist, um eine notwendige Konzentration an aktivem Katalysator (C) zu realisieren, und (B) einer oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegenden, Urettdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisenden Polyadditionsverbindung auf der Basis aliphatischer und/oder cycloaliphatischer Diisocyanate und (C) mindestens einem aktiven oder einem reaktiv aktivierbaren Lewissäure- Katalysator und (D) weiteren, aus der Urethanchemie bekannte Katalysatoren und (E) an sich bekannten Hilfs- und Zusatzmitteln, wobei D) und E) zugegeben sein können, eingesetzt werden, diese Ausgangsstoffe in Lösung und/oder in Schmelze längstens bis eine Molmassenerhöhung nachweisbar ist, homogenisiert werden, danach die Lösung oder die Schmelze schnell unterhalb der Reaktionstemperatur der Masse abgekühlt wird und anschließend eine Lagerung der härtbaren Masse erfolgen kann und danach oder an die Abkühlung anschließend die Weiterverarbeitung der härtbaren Masse zur vollständigen Vernetzung durchgeführt wird, wobei die Temperatur solange linear und/oder nichtlinear erhöht und/oder bei Reaktionstemperatur konstant gehalten wird, bis über DSC-Messungen im wesentlichen keine Reaktionswärme mehr nachweisbar ist.



13. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen in Schmelze in einem Laborkneter oder einem Co-Kneter und/oder einem Extruder erfolgt.

13. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen bei Temperaturen kleiner gleich  $110^{\circ}\text{C}$ , bevorzugt zwischen  $50$  und  $100^{\circ}\text{C}$  erfolgt.

14. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen bis 30 min durchgeführt wird.

15. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Abkühlung unter die Reaktionstemperatur nach der Homogenisierung der härtbaren Massen durch Einbringen der Schmelze in flüssigen Stickstoff oder durch Aufbringen auf ein Kühlband erfolgt.

16. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem mindestens eine der Komponenten (A) bis (E), bevorzugt (A) und (B) in flüssiger Form eingesetzt wird.

17. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Temperatur in einem Bereich von bevorzugt 20 K oberhalb der Homogenisierungstemperatur bis maximal  $190^{\circ}\text{C}$ , vorzugsweise bis  $160^{\circ}\text{C}$ , linear und/oder nichtlinear angehoben wird.

18. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Zugabe des Katalysators oder Katalysatorgemisches als Batch nach der Homogenisierung der Komponenten A, B, C und E bei abgesenkten Temperaturen durchgeführt wird.

19. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen in Schmelze erfolgt.

20. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen ein- oder mehrstufig in Schmelze durchgeführt wird, wobei der Katalysator bei einstufiger Homogenisierung bei tieferen Temperaturen und bei mehrstufiger Homogenisierung erst in der zweiten Stufe bei tieferen Temperaturen zudosiert wird.

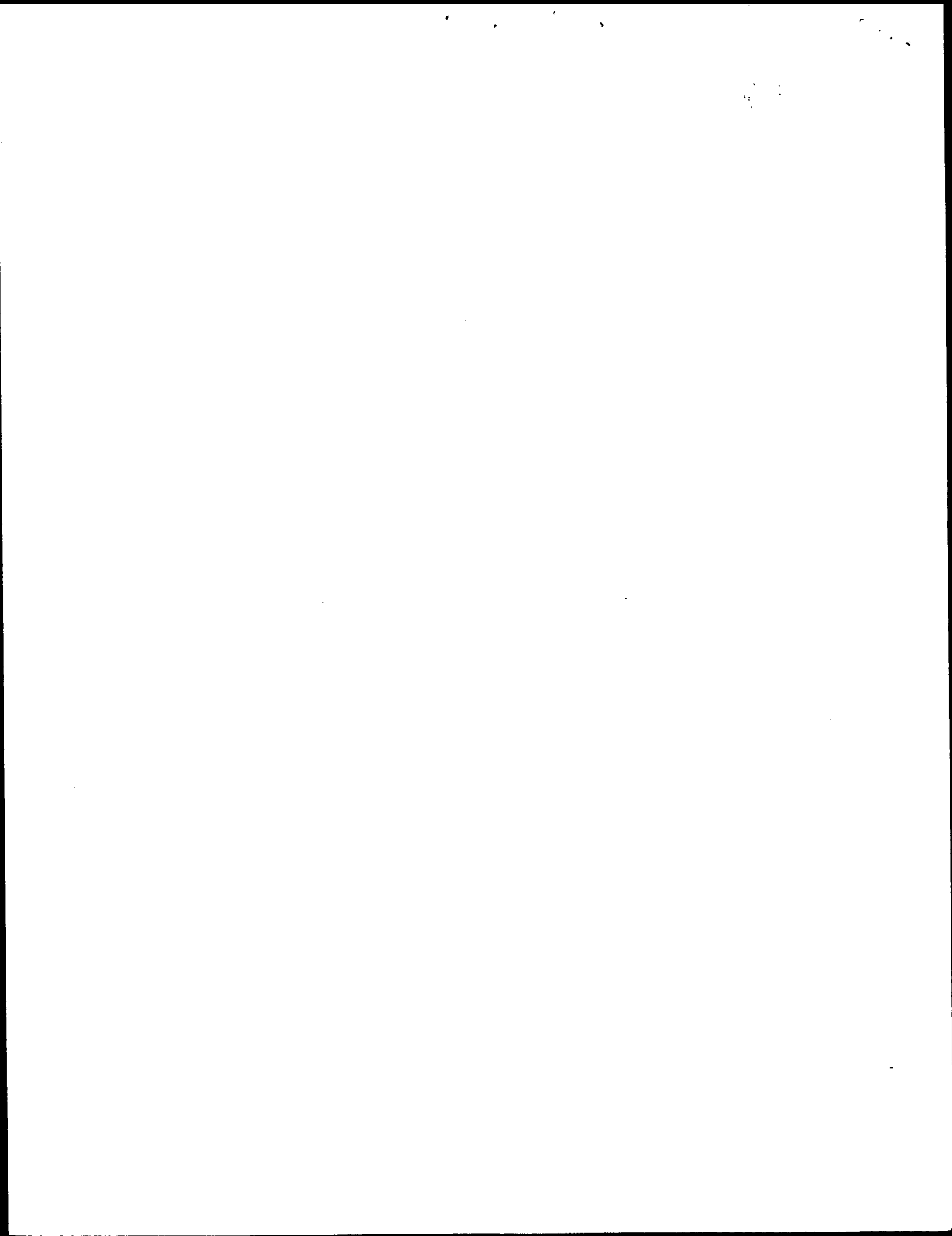
21. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Temperatur stufenweise erhöht wird und die Temperatur nach jedem Erhöhungsschritt für eine Zeitspanne von 1 bis 60 Minuten, vorteilhafterweise von 5 bis 30 Minuten, konstant gehalten wird.





22. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Temperatur in zwei Stufen erhöht wird, wobei die zweite Temperaturerhöhung unmittelbar darauffolgend oder zeitlich später durchgeführt wird.

23. Verwendung der Massen nach den Ansprüchen 1 bis 11 zur Beschichtung von hitzeresistenten und thermolabilen Substraten, zur Verkapselung von Bauteilen, als verarbeitbare, härtbare Formmasse und als thermisch härtbare Spachtelmasse.



# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT



(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 9806/IPF/PCT	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/09465	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 03/12/1999	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 10/12/1998
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C08G18/79		
Anmelder INSTITUT FÜR POLYMERFORSCHUNG DRESDENE.V. et al.		

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.  
  
☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).  
  
 Diese Anlagen umfassen insgesamt 5 Blätter.

- Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☒ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☒ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  16/03/2000	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  16.03.2001
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:   Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 apmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter  Heslop, P  Tel. Nr. +49 89 2399 9676 



# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

Absender: INTERNATIONALE RECHERCHENBEHÖRDE

## PCT


An  
Räuschenbach, Marion  
Postfach 27 01 75  
D-01172 Dresden  
GERMANY

MITTEILUNG ÜBER DIE ÜBERMITTLUNG DES  
INTERNATIONALEN RECHERCHENBERICHTS  
ODER DER ERKLÄRUNG

(Regel 44.1 PCT)

Absendedatum (Tag/Monat/Jahr) 20/04/2000	
Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 9806/IPF/PCT	WEITERES VORGEHEN siehe Punkte 1 und 4 unten
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 99/09465	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 03/12/1999
Anmelder INSTITUT FÜR POLYMERFORSCHUNG DRESDEN E.V et al.	

1. ☒ Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß der internationale Recherchenbericht erstellt wurde und ihm hiermit übermittelt wird.  
**Einreichung von Änderungen und einer Erklärung nach Artikel 19:**  
Der Anmelder kann auf eigenen Wunsch die Ansprüche der internationalen Anmeldung ändern (siehe Regel 46):
- Bis wann sind Änderungen einzureichen?**  
Die Frist zur Einreichung solcher Änderungen beträgt üblicherweise zwei Monate ab der Übermittlung des internationalen Recherchenberichts; weitere Einzelheiten sind den Anmerkungen auf dem Beiblatt zu entnehmen.
- Wo sind Änderungen einzureichen?**  
Unmittelbar beim Internationalen Büro der WIPO, 34, CHEMIN des Colombettes, CH-1211 Genf 20,  
Telefaxnr.: (41-22) 740.14.35  
Nähere Hinweise sind den Anmerkungen auf dem Beiblatt zu entnehmen.
2. ☐ Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß kein internationaler Recherchenbericht erstellt wird und daß ihm hiermit die Erklärung nach Artikel 17(2)a) übermittelt wird.
3. ☐ Hinsichtlich des Widerspruchs gegen die Entrichtung einer zusätzlichen Gebühr (zusätzlicher Gebühren) nach Regel 40.2 wird dem Anmelder mitgeteilt, daß
- ☐ der Widerspruch und die Entscheidung hierüber zusammen mit seinem Antrag auf Übermittlung des Wortlauts sowohl des Widerspruchs als auch der Entscheidung hierüber an die Bestimmungsämter dem Internationalen Büro übermittelt worden sind.
- ☐ noch keine Entscheidung über den Widerspruch vorliegt; der Anmelder wird benachrichtigt, sobald eine Entscheidung getroffen wurde.
4. **Weiteres Vorgehen:** Der Anmelder wird auf folgendes aufmerksam gemacht:  
Kurz nach Ablauf von 18 Monaten seit dem Prioritätsdatum wird die internationale Anmeldung vom Internationalen Büro veröffentlicht. Will der Anmelder die Veröffentlichung verhindern oder auf einen späteren Zeitpunkt verschieben, so muß gemäß Regel 90<sup>b</sup> bzw. 90<sup>c</sup> vor Abschluß der technischen Vorbereitungen für die internationale Veröffentlichung eine Erklärung über die Zurücknahme der internationalen Anmeldung oder des Prioritätsanspruchs beim Internationalen Büro eingehen.  
Innerhalb von 19 Monaten seit dem Prioritätsdatum ist ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung einzureichen, wenn der Anmelder den Eintritt in die nationale Phase bis zu 30 Monaten seit dem Prioritätsdatum (in manchen Ämtern sogar noch länger) verschieben möchte.  
Innerhalb von 20 Monaten seit dem Prioritätsdatum muß der Anmelder die für den Eintritt in die nationale Phase vorgeschriebenen Handlungen vor allen Bestimmungsämtern vornehmen, die nicht innerhalb von 19 Monaten seit dem Prioritätsdatum in der Anmeldung oder einer nachträglichen Auswahlerklärung ausgewählt wurden oder nicht ausgewählt werden konnten, da für sie Kapitel II des Vertrages nicht verbindlich ist.

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL-2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter Chantal Meyer
---	--



## ANMERKUNGEN ZU FORMBLATT PCT/ISA/220

Diese Anmerkungen sollen grundlegende Hinweise zur Einreichung von Änderungen gemäß Artikel 19 geben. Diesen Anmerkungen liegen die Erfordernisse des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens (PCT), der Ausführungsordnung und der Verwaltungsrichtlinien zu diesem Vertrag zugrunde. Bei Abweichungen zwischen diesen Anmerkungen und obengenannten Texten sind letztere maßgebend. Nähere Einzelheiten sind dem PCT-Leitfaden für Anmelder, einer Veröffentlichung der WIPO, zu entnehmen.

Die in diesen Anmerkungen verwendeten Begriffe "Artikel", "Regel" und "Abschnitt" beziehen sich jeweils auf die Bestimmungen des PCT-Vertrags, der PCT-Ausführungsordnung bzw. der PCT-Verwaltungsrichtlinien.

### HINWEISE ZU ÄNDERUNGEN GEMÄSS ARTIKEL 19

Nach Erhalt des internationalen Recherchenberichts hat der Anmelder die Möglichkeit, einmal die Ansprüche der internationalen Anmeldung zu ändern. Es ist jedoch zu betonen, daß, da alle Teile der internationalen Anmeldung (Ansprüche, Beschreibung und Zeichnungen) während des internationalen vorläufigen Prüfungsverfahrens geändert werden können, normalerweise keine Notwendigkeit besteht, Änderungen der Ansprüche nach Artikel 19 einzureichen, außer wenn der Anmelder z.B. zum Zwecke eines vorläufigen Schutzes die Veröffentlichung dieser Ansprüche wünscht oder ein anderer Grund für eine Änderung der Ansprüche vor ihrer internationalen Veröffentlichung vorliegt. Weiterhin ist zu beachten, daß ein vorläufiger Schutz nur in einigen Staaten erhältlich ist.

#### Welche Teile der internationalen Anmeldung können geändert werden?

Im Rahmen von Artikel 19 können nur die Ansprüche geändert werden.

In der internationalen Phase können die Ansprüche auch nach Artikel 34 vor der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde geändert (oder nochmals geändert) werden. Die Beschreibung und die Zeichnungen können nur nach Artikel 34 vor der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde geändert werden.

Beim Eintritt in die nationale Phase können alle Teile der internationalen Anmeldung nach Artikel 28 oder gegebenenfalls Artikel 41 geändert werden.

#### Bis wann sind Änderungen einzureichen?

Innerhalb von zwei Monaten ab der Übermittlung des internationalen Recherchenberichts oder innerhalb von sechzehn Monaten ab dem Prioritätsdatum, je nachdem, welche Frist später abläuft. Die Änderungen gelten jedoch als rechtzeitig eingereicht, wenn sie dem internationalen Büro nach Ablauf der maßgebenden Frist, aber noch vor Abschluß der technischen Vorbereitungen für die internationale Veröffentlichung (Regel 46.1) zugehen.

#### Wo sind die Änderungen nicht einzureichen?

Die Änderungen können nur beim internationalen Büro, nicht aber beim Anmeldeamt oder der internationalen Recherchenbehörde eingereicht werden (Regel 46.2).

Falls ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung eingereicht wurde/wird, siehe unten.

#### In welcher Form können Änderungen erfolgen?

Eine Änderung kann erfolgen durch Streichung eines oder mehrerer ganzer Ansprüche, durch Hinzufügung eines oder mehrerer neuer Ansprüche oder durch Änderung des Wortlauts eines oder mehrerer Ansprüche in der eingereichten Fassung.

Für jedes Anspruchsblatt, das sich aufgrund einer oder mehrerer Änderungen von dem ursprünglich eingereichten Blatt unterscheidet, ist ein Ersatzblatt einzureichen.

Alle Ansprüche, die auf einem Ersatzblatt erscheinen, sind mit arabischen Ziffern zu numerieren. Wird ein Anspruch gestrichen, so brauchen die anderen Ansprüche nicht neu nummeriert zu werden. Im Fall einer Neunummerierung sind die Ansprüche fortlaufend zu numerieren (Verwaltungsrichtlinien, Abschnitt 205 b)).

Die Änderungen sind in der Sprache abzufassen, in der die internationale Anmeldung veröffentlicht wird.

#### Welche Unterlagen sind den Änderungen beizufügen?

##### Begleitschreiben (Abschnitt 205 b)):

Die Änderungen sind mit einem Begleitschreiben einzureichen.

Das Begleitschreiben wird nicht zusammen mit der internationalen Anmeldung und den geänderten Ansprüchen veröffentlicht. Es ist nicht zu verwechseln mit der "Erklärung nach Artikel 19(1)" (siehe unten, "Erklärung nach Artikel 19 (1)").

Das Begleitschreiben ist nach Wahl des Anmelders in englischer oder französischer Sprache abzufassen. Bei englischsprachigen internationalen Anmeldungen ist das Begleitschreiben aber ebenfalls in englischer, bei französischsprachigen internationalen Anmeldungen in französischer Sprache abzufassen.





## ANMERKUNGEN ZU FORMBLATT PCT/ISA/220 (Fortsetzung)

Im Begleitschreiben sind die Unterschiede zwischen den Ansprüchen in der eingereichten Fassung und den geänderten Ansprüchen anzugeben. So ist insbesondere zu jedem Anspruch in der internationalen Anmeldung anzugeben (gleichlautende Angaben zu verschiedenen Ansprüchen können zusammengefaßt werden), ob

- i) der Anspruch unverändert ist;
- ii) der Anspruch gestrichen worden ist;
- iii) der Anspruch neu ist;
- iv) der Anspruch einen oder mehrere Ansprüche in der eingereichten Fassung ersetzt;
- v) der Anspruch auf die Teilung eines Anspruchs in der eingereichten Fassung zurückzuführen ist.

Im folgenden sind Beispiele angegeben, wie Änderungen im Begleitschreiben zu erläutern sind:

1. [Wenn anstelle von ursprünglich 48 Ansprüchen nach der Änderung einiger Ansprüche 51 Ansprüche existieren]:  
"Die Ansprüche 1 bis 29, 31, 32, 34, 35, 37 bis 48 werden durch geänderte Ansprüche gleicher Numerierung ersetzt; Ansprüche 30, 33 und 36 unverändert; neue Ansprüche 49 bis 51 hinzugefügt."
2. [Wenn anstelle von ursprünglich 15 Ansprüchen nach der Änderung aller Ansprüche 11 Ansprüche existieren]:  
"Geänderte Ansprüche 1 bis 11 treten an die Stelle der Ansprüche 1 bis 15."
3. [Wenn ursprünglich 14 Ansprüche existierten und die Änderungen darin bestehen, daß einige Ansprüche gestrichen werden und neue Ansprüche hinzugefügt werden]:  
"Ansprüche 1 bis 6 und 14 unverändert; Ansprüche 7 bis 13 gestrichen; neue Ansprüche 15, 16 und 17 hinzugefügt. "Oder" Ansprüche 7 bis 13 gestrichen; neue Ansprüche 15, 16 und 17 hinzugefügt; alle übrigen Ansprüche unverändert."
4. [Wenn verschiedene Arten von Änderungen durchgeführt werden]:  
"Ansprüche 1-10 unverändert; Ansprüche 11 bis 13, 18 und 19 gestrichen; Ansprüche 14, 15 und 16 durch geänderten Anspruch 14 ersetzt; Anspruch 17 in geänderte Ansprüche 15, 16 und 17 unterteilt; neue Ansprüche 20 und 21 hinzugefügt."

### "Erklärung nach Artikel 19(1)" (Regel 46.4)

Den Änderungen kann eine Erklärung beigelegt werden, mit der die Änderungen erläutert und ihre Auswirkungen auf die Beschreibung und die Zeichnungen dargelegt werden (die nicht nach Artikel 19 (1) geändert werden können).

Die Erklärung wird zusammen mit der internationalen Anmeldung und den geänderten Ansprüchen veröffentlicht.

Sie ist in der Sprache abzufassen, in der die internationale Anmeldung veröffentlicht wird.

Sie muß kurz gehalten sein und darf, wenn in englischer Sprache abgefaßt oder ins Englische übersetzt, nicht mehr als 500 Wörter umfassen.

Die Erklärung ist nicht zu verwechseln mit dem Begleitschreiben, das auf die Unterschiede zwischen den Ansprüchen in der eingereichten Fassung und den geänderten Ansprüchen hinweist, und ersetzt letzteres nicht. Sie ist auf einem gesonderten Blatt einzureichen und in der Überschrift als solche zu kennzeichnen, vorzugsweise mit den Worten "Erklärung nach Artikel 19 (1)".

Die Erklärung darf keine herabsetzenden Äußerungen über den internationalen Recherchenbericht oder die Bedeutung von in dem Bericht angeführten Veröffentlichungen enthalten. Sie darf auf im internationalen Recherchenbericht angeführte Veröffentlichungen, die sich auf einen bestimmten Anspruch beziehen, nur im Zusammenhang mit einer Änderung dieses Anspruchs Bezug nehmen.

### Auswirkungen eines bereits gestellten Antrags auf internationale vorläufige Prüfung

Ist zum Zeitpunkt der Einreichung von Änderungen nach Artikel 19 bereits ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung gestellt worden, so sollte der Anmelder in seinem Interesse gleichzeitig mit der Einreichung der Änderungen beim Internationalen Büro auch eine Kopie der Änderungen bei der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde einreichen (siehe Regel 62.2 a), erster Satz).

### Auswirkungen von Änderungen hinsichtlich der Übersetzung der internationalen Anmeldung beim Eintritt in die nationale Phase

Der Anmelder wird darauf hingewiesen, daß bei Eintritt in die nationale Phase möglicherweise anstatt oder zusätzlich zu der Übersetzung der Ansprüche in der eingereichten Fassung eine Übersetzung der nach Artikel 19 geänderten Ansprüche an die bestimmten/ausgewählten Ämter zu übermitteln ist.

Nähere Einzelheiten über die Erfordernisse jedes bestimmten/ausgewählten Amtes sind Band II des PCT-Leitfadens für Anmelder zu entnehmen.



## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INFORMATION CONCERNING ELECTED  
OFFICES NOTIFIED OF THEIR ELECTION

(PCT Rule 61.3)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

RAUSCHENBACH, Marion  
Postfach 27 01 75  
D-01172 Dresden  
ALLEMAGNE

Date of mailing (day/month/year) 15 June 2000 (15.06.00)		IMPORTANT INFORMATION	
Applicant's or agent's file reference 9806/IPF/PCT			
International application No. PCT/EP99/09465	International filing date (day/month/year) 03 December 1999 (03.12.99)	Priority date (day/month/year) 10 December 1998 (10.12.98)	
Applicant INSTITUT FÜR POLYMERFORSCHUNG DRESDEN E.V. et al			

1. The applicant is hereby informed that the International Bureau has, according to Article 31(7), notified each of the following Offices of its election:

AP : GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW

EP : AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE

National : AU, BG, BR, CA, CN, CZ, DE, IL, JP, KP, KR, MN, NO, NZ, PL, RO, RU, SE, SK, US

2. The following Offices have waived the requirement for the notification of their election; the notification will be sent to them by the International Bureau only upon their request:

EA : AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM

OA : BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG

National : AE, AL, AM, AT, AZ, BA, BB, BY, CH, CR, CU, DK, DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM,  
HR, HU, ID, IN, IS, KE, KG, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MW, MX, PT, SD, SG,  
SI, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VN, YU, ZA, ZW

3. The applicant is reminded that he must enter the "national phase" **before the expiration of 30 months from the priority date** before each of the Offices listed above. This must be done by paying the national fee(s) and furnishing, if prescribed, a translation of the international application (Article 39(1)(a)), as well as, where applicable, by furnishing a translation of any annexes of the international preliminary examination report (Article 36(3)(b) and Rule 74.1).

Some offices have fixed time limits expiring later than the above-mentioned time limit. For detailed information about the applicable time limits and the acts to be performed upon entry into the national phase before a particular Office, see Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The entry into the European regional phase is postponed **until 31 months from the priority date** for all States designated for the purposes of obtaining a European patent.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland  Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer:  J. Zahra  Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	--



# PATENT COOPERATION TREATY

WO 00/34355  
PCT/EP99/09465

**PCT**

## NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

RAUSCHENBACH, Marion  
Postfach 27 01 75  
D-01172 Dresden  
ALLEMAGNE

EINGEGANGEN  
27. JUNI 2000

**M Rauschenbach**  
IMPORTANT NOTICE

Date of mailing (day/month/year) 15 June 2000 (15.06.00)		
Applicant's or agent's file reference 9806/IPF/PCT		
International application No. PCT/EP99/09465	International filing date (day/month/year) 03 December 1999 (03.12.99)	Priority date (day/month/year) 10 December 1998 (10.12.98)
Applicant INSTITUT FÜR POLYMERFORSCHUNG DRESDEN E.V. et al		

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:  
**AU,CN,JP,KP,KR,US**

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

**AE,AL,AM,AP,AT,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,CA,CH,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,EA,EE,EP,ES,FI,GB,GD,GE, GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,KE,KG,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MX,NO,NZ, OA,PL,PT,RO,RU,SD,SE,SG,SI,SK,SL,TJ,TM,TR,TT,TZ,UA,UG,UZ,VN,YU,ZA,ZW**

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 15 June 2000 (15.06.00) under No. WO 00/34355

### REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

### REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland  Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer  <p style="text-align: center;">J. Zahra</p> Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---



## Continuation of Form PCT/IB/308

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF  
THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

Date of mailing (day/month/year) 15 June 2000 (15.06.00)	IMPORTANT NOTICE
Applicant's or agent's file reference 9806/IPF/PCT	International application No. PCT/EP99/09465
<p>The applicant is hereby notified that, at the time of establishment of this Notice, the time limit under Rule 46.1 for making amendments under Article 19 has not yet expired and the International Bureau had received neither such amendments nor a declaration that the applicant does not wish to make amendments.</p>	





## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

To:

RAUSCHENBACH, Marion  
PF 27 01 75  
D-01172 Dresden  
ALLEMAGNEEINGEGANGEN  
13. APR. 2000  
M Rauschenbach

Date of mailing (day/month/year) 04 April 2000 (04.04.00)	
Applicant's or agent's file reference 9806/IPF/PCT	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/EP99/09465	International filing date (day/month/year) 03 December 1999 (03.12.99)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 10 December 1998 (10.12.98)
Applicant INSTITUT FÜR POLYMERFORSCHUNG DRESDEN E.V. et al	

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

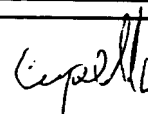
<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
10 Dec 1998 (10.12.98)	198 56 878.9	DE	17 Marc 2000 (17.03.00)

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

C. Cupello



Telephone No. (41-22) 338.83.38

The first part of the document discusses the importance of maintaining accurate records of all transactions. It emphasizes that proper record-keeping is essential for the success of any business and for the protection of the interests of all parties involved. The document then goes on to describe the various methods and techniques used to collect and analyze data, and to provide a detailed account of the results of the study.

The second part of the document focuses on the application of the findings of the study to the development of new products and services. It discusses the various challenges and opportunities associated with this process, and provides a detailed account of the steps taken to overcome these challenges and to develop successful products and services. The document also includes a detailed account of the marketing and sales strategies used to promote these products and services, and the results of these efforts.

The third part of the document discusses the future of the industry and the role of the company in this future. It provides a detailed account of the various trends and developments in the industry, and discusses the company's plans to stay ahead of these trends and to continue to grow and expand its business. The document also includes a detailed account of the company's financial performance and its plans for the future.

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF RECEIPT OF  
RECORD COPY

(PCT Rule 24.2(a))

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

RAUSCHENBACH, Marion  
PF 27 01 75  
D-01172 Dresden  
ALLEMAGNEEINGEGANGEN  
29. FEB. 2000  
M Rauschenbach

Date of mailing (day/month/year) 10 February 2000 (10.02.00)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference 9806/IPF/PCT	International application No. PCT/EP99/09465

The applicant is hereby notified that the International Bureau has received the record copy of the international application as detailed below.

Name(s) of the applicant(s) and State(s) for which they are applicants:

INSTITUT FÜR POLYMERFORSCHUNG DRESDEN E.V. (for all designated States except US)  
LEHMANN, Frank et al (for US)

International filing date : 03 December 1999 (03.12.99)  
Priority date(s) claimed : 10 December 1998 (10.12.98)  
Date of receipt of the record copy  
by the International Bureau : 27 January 2000 (27.01.00)  
List of designated Offices :

AP : GH,GM,KE,LS,MW,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZW  
EA : AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM  
EP : AT,BE,CH,CY,DE,DK,ES,FI,FR,GB,GR,IE,IT,LU,MC,NL,PT,SE  
OA : BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG  
National : AE,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,CA,CH,CN,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,EE,ES,FI,GB,  
GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KP,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MA,MD,MG,MK,  
MN,MW,MX,NO,NZ,PL,PT,RO,RU,SD,SE,SG,SI,SK,SL,TJ,TM,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VN,YU,ZA,  
ZW

## ATTENTION

The applicant should carefully check the data appearing in this Notification. In case of any discrepancy between these data and the indications in the international application, the applicant should immediately inform the International Bureau.

In addition, the applicant's attention is drawn to the information contained in the Annex, relating to:

- ☒ time limits for entry into the national phase  
☐ confirmation of precautionary designations  
☒ requirements regarding priority documents

A copy of this Notification is being sent to the receiving Office and to the International Searching Authority.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer:  Athina Nickitas-Etienne
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Telephone No. (41-22) 338.83.38



## INFORMATION ON TIME LIMITS FOR ENTERING THE NATIONAL PHASE

The applicant is reminded that the "national phase" must be entered before each of the designated Offices indicated in the Notification of Receipt of Record Copy (Form PCT/IB/301) by paying national fees and furnishing translations, as prescribed by the applicable national laws.

The time limit for performing these procedural acts is **20 MONTHS** from the priority date or, for those designated States which the applicant elects in a demand for international preliminary examination or in a later election, **30 MONTHS** from the priority date, provided that the election is made before the expiration of 19 months from the priority date. Some designated (or elected) Offices have fixed time limits which expire even later than 20 or 30 months from the priority date. In other Offices an extension of time or grace period, in some cases upon payment of an additional fee, is available.

In addition to these procedural acts, the applicant may also have to comply with other special requirements applicable in certain Offices. It is the applicant's responsibility to ensure that the necessary steps to enter the national phase are taken in a timely fashion. Most designated Offices do not issue reminders to applicants in connection with the entry into the national phase.

For detailed information about the procedural acts to be performed to enter the national phase before each designated Office, the applicable time limits and possible extensions of time or grace periods, and any other requirements, see the relevant Chapters of Volume II of the PCT Applicant's Guide. Information about the requirements for filing a demand for international preliminary examination is set out in Chapter IX of Volume I of the PCT Applicant's Guide.

GR and ES became bound by PCT Chapter II on 7 September 1996 and 6 September 1997, respectively, and may, therefore, be elected in a demand or a later election filed on or after 7 September 1996 and 6 September 1997, respectively, regardless of the filing date of the international application. (See second paragraph above.)

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

## CONFIRMATION OF PRECAUTIONARY DESIGNATIONS

This notification lists only specific designations made under Rule 4.9(a) in the request. It is important to check that these designations are correct. Errors in designations can be corrected where precautionary designations have been made under Rule 4.9(b). The applicant is hereby reminded that any precautionary designations may be confirmed according to Rule 4.9(c) before the expiration of 15 months from the priority date. If it is not confirmed, it will automatically be regarded as withdrawn by the applicant. There will be no reminder and no invitation. Confirmation of a designation consists of the filing of a notice specifying the designated State concerned (with an indication of the kind of protection or treatment desired) and the payment of the designation and confirmation fees. Confirmation must reach the receiving Office within the 15-month time limit.

## REQUIREMENTS REGARDING PRIORITY DOCUMENTS

For applicants who have not yet complied with the requirements regarding priority documents, the following is recalled.

Where the priority of an earlier national, regional or international application is claimed, the applicant must submit a copy of the said earlier application, certified by the authority with which it was filed ("the priority document") to the receiving Office (which will transmit it to the International Bureau) or directly to the International Bureau, before the expiration of 16 months from the priority date, provided that any such priority document may still be submitted to the International Bureau before that date of international publication of the international application, in which case that document will be considered to have been received by the International Bureau on the last day of the 16-month time limit (Rule 17.1(a)).

Where the priority document is issued by the receiving Office, the applicant may, instead of submitting the priority document, request the receiving Office to prepare and transmit the priority document to the International Bureau. Such request must be made before the expiration of the 16-month time limit and may be subjected by the receiving Office to the payment of a fee (Rule 17.1(b)).

If the priority document concerned is not submitted to the International Bureau or if the request to the receiving Office to prepare and transmit the priority document has not been made (and the corresponding fee, if any, paid) within the applicable time limit indicated under the preceding paragraphs, any designated State may disregard the priority claim, provided that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

Where several priorities are claimed, the priority date to be considered for the purposes of computing the 16-month time limit is the filing date of the earliest application whose priority is claimed.



VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM  
GEBIET DES PATENTWESENS

PAT 191/01  
27. März 2001

Absender: MIT DER INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN  
PRÜFUNG BEAUFTRAGTE BEHÖRDE

An:

Rauschenbach, Marion  
Postfach 27 01 75  
D-01172 Dresden  
ALLEMAGNE

INGEGANGEN  
17. MRZ. 2001  
Rauschenbach

PCT

MITTEILUNG ÜBER DIE ÜBERSENDUNG  
DES INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN  
PRÜFUNGSBERICHTS

(Regel 71.1 PCT)

Absendedatum  
(Tag/Monat/Jahr) 16.03.2001

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts  
9806/IPF/PCT

WICHTIGE MITTEILUNG

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP99/09465

Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr)  
03/12/1999

Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)  
10/12/1998

Anmelder

INSTITUT FÜR POLYMERFORSCHUNG DRESDENE.V. et al.

1. Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß ihm die mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde hiermit den zu der internationalen Anmeldung erstellten internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen, übermittelt.
2. Eine Kopie des Berichts wird - gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen - dem Internationalen Büro zur Weiterleitung an alle ausgewählten Ämter übermittelt.
3. Auf Wunsch eines ausgewählten Amtes wird das Internationale Büro eine Übersetzung des Berichts (jedoch nicht der Anlagen) ins Englische anfertigen und diesem Amt übermitteln.


4. ERINNERUNG

Zum Eintritt in die nationale Phase hat der Anmelder vor jedem ausgewählten Amt innerhalb von 30 Monaten ab dem Prioritätsdatum (oder in manchen Ämtern noch später) bestimmte Handlungen (Einreichung von Übersetzungen und Entrichtung nationaler Gebühren) vorzunehmen (Artikel 39 (1)) (siehe auch die durch das Internationale Büro im Formblatt PCT/IB/301 übermittelte Information).

Ist einem ausgewählten Amt eine Übersetzung der internationalen Anmeldung zu übermitteln, so muß diese Übersetzung auch Übersetzungen aller Anlagen zum internationalen vorläufigen Prüfungsbericht enthalten. Es ist Aufgabe des Anmelders, solche Übersetzungen anzufertigen und den betroffenen ausgewählten Ämtern direkt zuzuleiten.

Weitere Einzelheiten zu den maßgebenden Fristen und Erfordernissen der ausgewählten Ämter sind Band II des PCT-Leitfadens für Anmelder zu entnehmen.

Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde

 Europäisches Patentamt  
D-80298 München  
Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d  
Fax: +49 89 2399 - 4465

Bevollmächtigter Bediensteter

Bauer-Kober, S

Tel. +49 89 2399-8014









# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts <b>9806/IPF/PCT</b>	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen <b>PCT/EP99/09465</b>	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) <b>03/12/1999</b>	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) <b>10/12/1998</b>
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK <b>C08G18/79</b>		
Anmelder <b>INSTITUT FÜR POLYMERFORSCHUNG DRESDENE.V. et al.</b>		
<p>1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).</p> <p>Diese Anlagen umfassen insgesamt 5 Blätter.</p>		
<p>3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <ul style="list-style-type: none"><li>I <input checked="" type="checkbox"/> Grundlage des Berichts</li><li>II <input type="checkbox"/> Priorität</li><li>III <input type="checkbox"/> Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</li><li>IV <input type="checkbox"/> Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</li><li>V <input checked="" type="checkbox"/> Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</li><li>VI <input type="checkbox"/> Bestimmte angeführte Unterlagen</li><li>VII <input checked="" type="checkbox"/> Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</li><li>VIII <input checked="" type="checkbox"/> Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</li></ul>		
Datum der Einreichung des Antrags  <b>16/03/2000</b>	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  <b>16.03.2001</b>	
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:   <b>Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465</b>	Bevollmächtigter Bediensteter  <b>Heslop, P</b>  Tel. Nr. +49 89 2399 8676  	



**I. Grundlage des Berichts**

1. Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten.*):

**Beschreibung, Seiten:**

1-10                      ursprüngliche Fassung

**Patentansprüche, Nr.:**

1-23                      eingegangen am                      03/03/2001    mit Schreiben vom                      01/03/2001

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,                      Seiten:
- ☐ Ansprüche,                      Nr.:
- ☐ Zeichnungen,                      Blatt:



# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/09465

5. ☒ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).*  
**siehe Beiblatt**

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:  
**siehe Beiblatt**

## V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

### 1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	4-22
	Nein: Ansprüche	1-3,23
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	4-22
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-23
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen  
**siehe Beiblatt**

## VII. Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist:  
**siehe Beiblatt**

## VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:  
**siehe Beiblatt**



Fortsetzung des Absatzes I (5)

Die Anmelderin ist der Meinung, daß die Änderungen im Anspruch 1 (die Passage "wobei (C1) ..... oder reaktivierbar sind") durch die ursprüngliche Offenbarung auf Seite 3, 4. Absatz, Seite 7, vorletzter und letzter Absatz und Seite 8, 1. Absatz gestützt seien. Die Kombination von Merkmalen in dieser Passage läßt sich nicht von diesen Stellen ableiten. Der Anspruch 1 ist daher unzulässig erweitert. Die Merkmale können weiterhin nicht bei der Bewertung der Neuheit und der erfinderischen Tätigkeit berücksichtigt werden.

Fortsetzung des Absatzes I (6)

Da Hilfsanträge im PCT Verfahren nicht zulässig sind, werden nur die Ansprüche in der Anlage 1 berücksichtigt.

Fortsetzung des Absatzes V

Nächstliegender Stand der Technik

D1 = US-A-5 756 634.

Neuheit

In D1 wird eine Zusammensetzung zur Beschichtung von Substraten beschrieben, die ein Hydroxylgruppen aufweisendes Polymer, ein Uretdiongruppen aufweisendes blockiertes Polyisocyanat auf der Basis von Isophorondiisocyanat, und ein Wismut Carboxylat (ein Beispiel für eine Lewissäure) als Katalysator, enthält. Das OH-Gruppen aufweisende Polymer kann ein Polyester sein und eine OH-Zahl von 10-300 aufweisen. In diesem Zusammenhang, siehe D1, Anspruch 1 und Spalte 2, Zeile 22. Da nicht explizit aus D1 hervorgeht, daß dieses Polymer COOH-Gruppen enthalten muß, kann die Abwesenheit von COOH-Gruppen in der vorliegenden Anmeldung nicht als abgrenzend angesehen werden.

Das verbleibende Merkmal des Anspruchs 1, das das Molekulargewicht betrifft, ist nicht explizit im Dokument D1 offenbart. Es handelt sich dabei jedoch um einen Parameter,





der mit der OH-Zahl verknüpft und daher mit dem Stand der Technik vergleichbar ist. Da sich die Bereiche für die OH-Zahl weitgehend überschneiden, kann folglich die Neuheit für das Molekulargewicht ebenfalls nicht anerkannt werden. Falls der Anmelder dennoch nachweisen wollte, daß dieses Merkmal nicht in D1 vorhanden ist, sollte dies durch konkrete Beweise belegt werden.

Daher kann die Neuheit für den Gegenstand der Ansprüche 1, 2, 3 und 23 nicht anerkannt werden.

#### Erfinderische Tätigkeit

Bis zur Klärung der Neuheitsfrage kann keine endgültige Meinung zur erfinderischen Tätigkeit abgegeben werden. Trotzdem wird die Anmelderin gebeten zu zeigen, in welcher Hinsicht ein neues Merkmal auch ein Indiz für eine erfinderische Tätigkeit sein könnte.

#### Fortsetzung des Absatzes VII

Die Ansprüche sind falsch numeriert; es bestehen nämlich zwei verschiedene Ansprüche 13.

#### Fortsetzung des Absatzes VIII

Die Ansprüche 2, 13, 17 und 21 sind nicht knapp gefaßt, weil sie Ausdrücke wie "z.B.", "bevorzugt", "vorzugsweise", und "vorteilhafterweise" enthalten; letztere haben keine einschränkende Wirkung, sind also überflüssig.



ANLAGE

## Anlage 1

## Geänderte Patentansprüche zur PCT/EP99/09465

## Patentansprüche

1. Härtbare, uretdiongruppenhaltige Massen, enthaltend (A) eine, endständige und/oder seitenständige Hydroxylgruppen aufweisende, lineare oder verzweigte Bindemittel-Komponente mit einer OH- Zahl von 25 bis 400 und einem mittleren Molekulargewicht von 400 bis 20.000, die oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegt, wobei (A1) entweder die Bindemittelkomponente frei von Carboxylgruppen ist, oder (A2) die Konzentration an Carboxylgruppen kleiner ist als die Konzentration an aktivem Katalysator (C) oder (A3) bei einer höheren Konzentration an Carboxylgruppen gegenüber der eingesetzten Katalysatorkonzentration (C) eine solche Menge reaktivem Agens zugegeben wird, die zur Blockierung der Menge an Carboxylgruppen notwendig ist, um eine notwendige Konzentration an aktivem Katalysator (C) zu realisieren, und (B) eine oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegende, Uretdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisende Polyadditionsverbindung auf der Basis aliphatischer und/oder cycloaliphatischer Diisocyanate und (C) mindestens einen aktiven oder einen reaktiv aktivierbaren Lewissäure-Katalysator, wobei (C1) im Fall nach (A1) und (A2) der Einsatz von Lewissäure-Carboxylaten als Katalysator ausgeschlossen ist und wobei (C2) im Fall nach (A3) auch Lewissäure-Carboxylate mit eingeschlossen sind, die durch alkylierende Agenzien zum Carbonsäureester und unter Lewissäure-Alkoholat-Bildung reaktiviert oder reaktivierbar sind und (D) weitere aus der Urethanchemie bekannte Katalysatoren und (E) an sich bekannte Hilfs- und Zusatzmittel, wobei D) und E) zugegeben sein können.
2. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente A) aus einer Hydroxylgruppen aufweisenden polymeren Verbindung besteht, wie z.B. Polyacrylate, Polyether, Polyester und Oligo- bzw. Polyepoxide.
3. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente B) aus einer Uretdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisenden Polyadditionsverbindung auf Basis von Isophorondiisocyanat und/oder Hexamethyldiisocyanat besteht.



4. Massen gemäß Anspruch 1, bei dem das reaktive Agens eine Epoxyverbindung und/oder eine Oxazolinverbindung ist.

5. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente C) aus mindestens einem metallorganischen Katalysator der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

R = Alkylrest und

X = Carboxylatrest bedeutet,  
besteht.

6. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente C) aus mindestens einem metallorganischen Katalysator der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

R = Alkylrest und

Y = Alkoholatrest bedeutet,  
besteht.

7. Härtbare Masse gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponente C) aus mindestens einem metallorganischen Katalysator der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

Z = Acetylacetonatrest und

n = 2 oder 3 bedeutet,  
besteht.

8. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente C) aus mindestens einem Derivat eines metallorganischen Katalysators gemäß den Ansprüchen 5 bis 7 besteht.

9. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente C) aus beliebigen Mischungen der genannten metallorganischen Katalysatoren und Derivate gemäß der Ansprüche 5 bis 8 besteht.



10. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente D) aus nucleophilen Substanzen besteht.
11. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente A) eine OH-Zahl von 25 bis 200 und ein mittleres Molekulargewicht von 1.000 bis 10.000 aufweist.
12. Verfahren zur Herstellung von härtbaren, uretdiongruppenhaltigen Massen nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 11, bei dem als Ausgangsstoffe unvernetzte Massen, bestehend aus (A) einer, endständige und/oder seitenständige Hydroxylgruppen aufweisenden, linearen oder verzweigten Bindemittel-Komponente mit einer OH-Zahl von 25 bis 400 und einem mittleren Molekulargewicht von 400 bis 20.000, die oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegt, wobei (A1) entweder die Bindemittelkomponente frei von Carboxylgruppen ist, oder (A2) die Konzentration an Carboxylgruppen kleiner ist als die Konzentration an aktivem Katalysator (C) oder (A3) bei einer höheren Konzentration an Carboxylgruppen gegenüber der eingesetzten Katalysatorkonzentration (C) eine solche Menge an reaktivem Agens zugegeben wird, die zur Blockierung der Menge an Carboxylgruppen notwendig ist, um eine notwendige Konzentration an aktivem Katalysator (C) zu realisieren, und (B) einer oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegenden, Uretidiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisenden Polyadditionsverbindung auf der Basis aliphatischer und/oder cycloaliphatischer Diisocyanate und (C) mindestens einem aktiven oder einem reaktiv aktivierbaren Lewissäure- Katalysator und (D) weiteren, aus der Urethanchemie bekannte Katalysatoren und (E) an sich bekannten Hilfs- und Zusatzmitteln, wobei D) und E) zugegeben sein können, eingesetzt werden, diese Ausgangsstoffe in Lösung und/oder in Schmelze längstens bis eine Molmassenerhöhung nachweisbar ist, homogenisiert werden, danach die Lösung oder die Schmelze schnell unterhalb der Reaktionstemperatur der Masse abgekühlt wird und anschließend eine Lagerung der härtbaren Masse erfolgen kann und danach oder an die Abkühlung anschließend die Weiterverarbeitung der härtbaren Masse zur vollständigen Vernetzung durchgeführt wird, wobei die Temperatur solange linear und/oder nichtlinear erhöht und/oder bei Reaktionstemperatur konstant gehalten wird, bis über DSC-Messungen im wesentlichen keine Reaktionswärme mehr nachweisbar ist.





13. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen in Schmelze in einem Laborkneter oder einem Co-Kneter und/oder einem Extruder erfolgt.
13. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen bei Temperaturen kleiner gleich  $110^{\circ}\text{C}$ , bevorzugt zwischen  $50$  und  $100^{\circ}\text{C}$  erfolgt.
14. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen bis 30 min durchgeführt wird.
15. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Abkühlung unter die Reaktionstemperatur nach der Homogenisierung der härtbaren Massen durch Einbringen der Schmelze in flüssigen Stickstoff oder durch Aufbringen auf ein Kühlband erfolgt.
16. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem mindestens eine der Komponenten (A) bis (E), bevorzugt (A) und (B) in flüssiger Form eingesetzt wird.
17. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Temperatur in einem Bereich von bevorzugt 20 K oberhalb der Homogenisierungstemperatur bis maximal  $190^{\circ}\text{C}$ , vorzugsweise bis  $160^{\circ}\text{C}$ , linear und/oder nichtlinear angehoben wird.
18. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Zugabe des Katalysators oder Katalysatorgemisches als Batch nach der Homogenisierung der Komponenten A, B, C und E bei abgesenkten Temperaturen durchgeführt wird.
19. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen in Schmelze erfolgt.
20. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen ein- oder mehrstufig in Schmelze durchgeführt wird, wobei der Katalysator bei einstufiger Homogenisierung bei tieferen Temperaturen und bei mehrstufiger Homogenisierung erst in der zweiten Stufe bei tieferen Temperaturen zudosiert wird.
21. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Temperatur stufenweise erhöht wird und die Temperatur nach jedem Erhöhungsschritt für eine Zeitspanne von 1 bis 60 Minuten, vorteilhafterweise von 5 bis 30 Minuten, konstant gehalten wird.



22. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Temperatur in zwei Stufen erhöht wird, wobei die zweite Temperaturerhöhung unmittelbar darauffolgend oder zeitlich später durchgeführt wird.

23. Verwendung der Massen nach den Ansprüchen 1 bis 11 zur Beschichtung von hitzeresistenten und thermolabilen Substraten, zur Verkapselung von Bauteilen, als verarbeitbare, härtbare Formmasse und als thermisch härtbare Spachtelmasse.

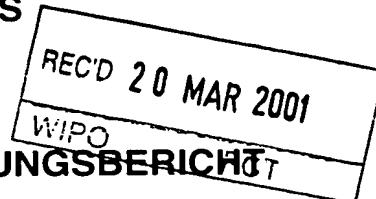


# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)





Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 9806/IPF/PCT	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/09465	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 03/12/1999	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 10/12/1998
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C08G18/79		
Anmelder INSTITUT FÜR POLYMERFORSCHUNG DRESDENE.V. et al.		

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.  
  
☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).  
  
 Diese Anlagen umfassen insgesamt 5 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☒ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☒ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  16/03/2000	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  16.03.2001
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:   Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter  Heslop, P  Tel. Nr. +49 89 2399 8676 



**I. Grundlage des Berichts**

1. Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten.*):

**Beschreibung, Seiten:**

1-10                      ursprüngliche Fassung

**Patentansprüche, Nr.:**

1-23                      eingegangen am                      03/03/2001    mit Schreiben vom    01/03/2001

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,              Seiten:
- ☐ Ansprüche,                Nr.:
- ☐ Zeichnungen,              Blatt:





5. ☒ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).*  
**siehe Beiblatt**

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:  
**siehe Beiblatt**

**V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

**1. Feststellung**

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	4-22
	Nein: Ansprüche	1-3,23
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	4-22
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-23
	Nein: Ansprüche	

- 2. Unterlagen und Erklärungen**  
**siehe Beiblatt**

**VII. Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung**

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist:  
**siehe Beiblatt**

**VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung**

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:  
**siehe Beiblatt**



Fortsetzung des Absatzes I (5)

Die Anmelderin ist der Meinung, daß die Änderungen im Anspruch 1 (die Passage "wobei (C1) ..... oder reaktivierbar sind") durch die ursprüngliche Offenbarung auf Seite 3, 4. Absatz, Seite 7, vorletzter und letzter Absatz und Seite 8, 1. Absatz gestützt seien. Die Kombination von Merkmalen in dieser Passage läßt sich nicht von diesen Stellen ableiten. Der Anspruch 1 ist daher unzulässig erweitert. Die Merkmale können weiterhin nicht bei der Bewertung der Neuheit und der erfinderischen Tätigkeit berücksichtigt werden.

Fortsetzung des Absatzes I (6)

Da Hilfsanträge im PCT Verfahren nicht zulässig sind, werden nur die Ansprüche in der Anlage 1 berücksichtigt.

Fortsetzung des Absatzes V

Nächstliegender Stand der Technik

D1 = US-A-5 756 634.

Neuheit

In D1 wird eine Zusammensetzung zur Beschichtung von Substraten beschrieben, die ein Hydroxylgruppen aufweisendes Polymer, ein Uretdiongruppen aufweisendes blockiertes Polyisocyanat auf der Basis von Isophorondiisocyanat, und ein Wismut Carboxylat (ein Beispiel für eine Lewisäure) als Katalysator, enthält. Das OH-Gruppen aufweisende Polymer kann ein Polyester sein und eine OH-Zahl von 10-300 aufweisen. In diesem Zusammenhang, siehe D1, Anspruch 1 und Spalte 2, Zeile 22. Da nicht explizit aus D1 hervorgeht, daß dieses Polymer COOH-Gruppen enthalten muß, kann die Abwesenheit von COOH-Gruppen in der vorliegenden Anmeldung nicht als abgrenzend angesehen werden.

Das verbleibende Merkmal des Anspruchs 1, das das Molekulargewicht betrifft, ist nicht explizit im Dokument D1 offenbart. Es handelt sich dabei jedoch um einen Parameter,



der mit der OH-Zahl verknüpft und daher mit dem Stand der Technik vergleichbar ist. Da sich die Bereiche für die OH-Zahl weitgehend überschneiden, kann folglich die Neuheit für das Molekulargewicht ebenfalls nicht anerkannt werden. Falls der Anmelder dennoch nachweisen wollte, daß dieses Merkmal nicht in D1 vorhanden ist, sollte dies durch konkrete Beweise belegt werden.

Daher kann die Neuheit für den Gegenstand der Ansprüche 1, 2, 3 und 23 nicht anerkannt werden.

#### Erfinderische Tätigkeit

Bis zur Klärung der Neuheitsfrage kann keine endgültige Meinung zur erfinderischen Tätigkeit abgegeben werden. Trotzdem wird die Anmelderin gebeten zu zeigen, in welcher Hinsicht ein neues Merkmal auch ein Indiz für eine erfinderische Tätigkeit sein könnte.

#### Fortsetzung des Absatzes VII

Die Ansprüche sind falsch numeriert; es bestehen nämlich zwei verschiedene Ansprüche 13.

#### Fortsetzung des Absatzes VIII

Die Ansprüche 2, 13, 17 und 21 sind nicht knapp gefaßt, weil sie Ausdrücke wie "z.B.", "bevorzugt", "vorzugsweise", und "vorteilhafterweise" enthalten; letztere haben keine einschränkende Wirkung, sind also überflüssig.



## Anlage 1

Geänderte Patentansprüche zur PCT/EP99/09465

## Patentansprüche

1. Härtbare, uretdiongruppenhaltige Massen, enthaltend (A) eine, endständige und/oder seitenständige Hydroxylgruppen aufweisende, lineare oder verzweigte Bindemittel-Komponente mit einer OH- Zahl von 25 bis 400 und einem mittleren Molekulargewicht von 400 bis 20.000, die oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegt, wobei (A1) entweder die Bindemittelkomponente frei von Carboxylgruppen ist, oder (A2) die Konzentration an Carboxylgruppen kleiner ist als die Konzentration an aktivem Katalysator (C) oder (A3) bei einer höheren Konzentration an Carboxylgruppen gegenüber der eingesetzten Katalysatorkonzentration (C) eine solche Menge reaktivem Agens zugegeben wird, die zur Blockierung der Menge an Carboxylgruppen notwendig ist, um eine notwendige Konzentration an aktivem Katalysator (C) zu realisieren, und (B) eine oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegende, Uretdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisende Polyadditionsverbindung auf der Basis aliphatischer und/oder cycloaliphatischer Diisocyanate und (C) mindestens einen aktiven oder einen reaktiv aktivierbaren Lewissäure-Katalysator,

wobei (C1) im Fall nach (A1) und (A2) der Einsatz von Lewissäure-Carboxylaten als Katalysator ausgeschlossen ist und wobei (C2) im Fall nach (A3) auch Lewissäure-Carboxylate mit eingeschlossen sind, die durch alkylierende Agenzien zum Carbonsäureester und unter Lewissäure-Alkoholat-Bildung reaktiviert oder reaktivierbar sind

und (D) weitere aus der Urethanchemie bekannte Katalysatoren und (E) an sich bekannte Hilfs- und Zusatzmittel, wobei D) und E) zugegeben sein können.

2. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente A) aus einer Hydroxylgruppen aufweisenden polymeren Verbindung besteht, wie z.B. Polyacrylate, Polyether, Polyester und Oligo- bzw. Polyepoxide.

3. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente B) aus einer Uretdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisenden Polyadditionsverbindung auf Basis von Isophorondiisocyanat und/oder Hexamethyldiisocyanat besteht.





4. Massen gemäß Anspruch 1, bei dem das reaktive Agens eine Epoxyverbindung und/oder eine Oxazolinverbindung ist.

5. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente C) aus mindestens einem metallorganischen Katalysator der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

R = Alkylrest und

X = Carboxylatrest bedeutet,  
besteht.

6. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente C) aus mindestens einem metallorganischen Katalysator der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

R = Alkylrest und

Y = Alkoholatrest bedeutet,  
besteht.

7. Härtbare Masse gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponente C) aus mindestens einem metallorganischen Katalysator der allgemeinen Formel



in welcher

Me = Metall

Z = Acetylacetonatrest und

n = 2 oder 3 bedeutet,  
besteht.

8. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente C) aus mindestens einem Derivat eines metallorganischen Katalysators gemäß den Ansprüchen 5 bis 7 besteht.

9. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente C) aus beliebigen Mischungen der genannten metallorganischen Katalysatoren und Derivate gemäß der Ansprüche 5 bis 8 besteht.



10. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente D) aus nucleophilen Substanzen besteht.
11. Massen gemäß Anspruch 1, bei der die Komponente A) eine OH-Zahl von 25 bis 200 und ein mittleres Molekulargewicht von 1.000 bis 10.000 aufweist.
12. Verfahren zur Herstellung von härtbaren, uretdiongruppenhaltigen Massen nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 11, bei dem als Ausgangsstoffe unvernetzte Massen, bestehend aus (A) einer, endständige und/oder seitenständige Hydroxylgruppen aufweisenden, linearen oder verzweigten Bindemittel-Komponente mit einer OH-Zahl von 25 bis 400 und einem mittleren Molekulargewicht von 400 bis 20.000, die oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegt, wobei (A1) entweder die Bindemittelkomponente frei von Carboxylgruppen ist, oder (A2) die Konzentration an Carboxylgruppen kleiner ist als die Konzentration an aktivem Katalysator (C) oder (A3) bei einer höheren Konzentration an Carboxylgruppen gegenüber der eingesetzten Katalysatorkonzentration (C) eine solche Menge an reaktivem Agens zugegeben wird, die zur Blockierung der Menge an Carboxylgruppen notwendig ist, um eine notwendige Konzentration an aktivem Katalysator (C) zu realisieren, und (B) einer oberhalb der Reaktions- oder Verarbeitungstemperatur in flüssiger oder viskoser Form vorliegenden, Urettdiongruppen und gegebenenfalls freie Isocyanatgruppen aufweisenden Polyadditionsverbindung auf der Basis aliphatischer und/oder cycloaliphatischer Diisocyanate und (C) mindestens einem aktiven oder einem reaktiv aktivierbaren Lewissäure- Katalysator und (D) weiteren, aus der Urethanchemie bekannte Katalysatoren und (E) an sich bekannten Hilfs- und Zusatzmitteln, wobei D) und E) zugegeben sein können, eingesetzt werden, diese Ausgangsstoffe in Lösung und/oder in Schmelze längstens bis eine Molmassenerhöhung nachweisbar ist, homogenisiert werden, danach die Lösung oder die Schmelze schnell unterhalb der Reaktionstemperatur der Masse abgekühlt wird und anschließend eine Lagerung der härtbaren Masse erfolgen kann und danach oder an die Abkühlung anschließend die Weiterverarbeitung der härtbaren Masse zur vollständigen Vernetzung durchgeführt wird, wobei die Temperatur solange linear und/oder nichtlinear erhöht und/oder bei Reaktionstemperatur konstant gehalten wird, bis über DSC-Messungen im wesentlichen keine Reaktionswärme mehr nachweisbar ist.



13. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen in Schmelze in einem Laborkneteter oder einem Co-Kneteter und/oder einem Extruder erfolgt.
13. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen bei Temperaturen kleiner gleich  $110^{\circ}\text{C}$ , bevorzugt zwischen  $50$  und  $100^{\circ}\text{C}$  erfolgt.
14. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen bis 30 min durchgeführt wird.
15. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Abkühlung unter die Reaktionstemperatur nach der Homogenisierung der härtbaren Massen durch Einbringen der Schmelze in flüssigen Stickstoff oder durch Aufbringen auf ein Kühlband erfolgt.
16. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem mindestens eine der Komponenten (A) bis (E), bevorzugt (A) und (B) in flüssiger Form eingesetzt wird.
17. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Temperatur in einem Bereich von bevorzugt 20 K oberhalb der Homogenisierungstemperatur bis maximal  $190^{\circ}\text{C}$ , vorzugsweise bis  $160^{\circ}\text{C}$ , linear und/oder nichtlinear angehoben wird.
18. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Zugabe des Katalysators oder Katalysatorgemisches als Batch nach der Homogenisierung der Komponenten A, B, C und E bei abgesenkten Temperaturen durchgeführt wird.
19. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen in Schmelze erfolgt.
20. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Homogenisierung der härtbaren Massen ein- oder mehrstufig in Schmelze durchgeführt wird, wobei der Katalysator bei einstufiger Homogenisierung bei tieferen Temperaturen und bei mehrstufiger Homogenisierung erst in der zweiten Stufe bei tieferen Temperaturen zugesetzt wird.
21. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Temperatur stufenweise erhöht wird und die Temperatur nach jedem Erhöhungsschritt für eine Zeitspanne von 1 bis 60 Minuten, vorteilhafterweise von 5 bis 30 Minuten, konstant gehalten wird.



22. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem die Temperatur in zwei Stufen erhöht wird, wobei die zweite Temperaturerhöhung unmittelbar darauffolgend oder zeitlich später durchgeführt wird.

23. Verwendung der Massen nach den Ansprüchen 1 bis 11 zur Beschichtung von hitzeresistenten und thermolabilen Substraten, zur Verkapselung von Bauteilen, als verarbeitbare, härtbare Formmasse und als thermisch härtbare Spachtelmasse.





# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts <b>9806/IPF/PCT</b>	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen <b>PCT/EP 99/ 09465</b>	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) <b>03/12/1999</b>	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) <b>10/12/1998</b>
Anmelder <b>INSTITUT FÜR POLYMERFORSCHUNG DRESDEN E.V et al.</b>		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 2 Blätter.



Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

#### 1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.



Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das



in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.



zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.



bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.



bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.



Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.



Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2.



**Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen** (siehe Feld I).

3.



**Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung** (siehe Feld II).

#### 4. Hinsichtlich der **Bezeichnung der Erfindung**



wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.



wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

#### 5. Hinsichtlich der **Zusammenfassung**



wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.



wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

#### 6. Folgende Abbildung der **Zeichnungen** ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. \_\_\_\_\_



wie vom Anmelder vorgeschlagen



weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.



weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.



keine der Abb.



Feld III WORTLAUT DER ZUSAMMENFASSUNG (Fortsetzung von Punkt 5 auf Blatt 1)

Line 6 after "wobei" delete "(A1)" and after "entweder" add "(A1)"  
Line 13 after "danach" insert "die lösung oder die Schmelze"



A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 C08G18/79 C08G18/22

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

**B. RECHERCHIERTE GEBIETE**

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 7 C08G

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

**C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN**

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X A	US 5 621 064 A (LAAS HANS-JOSEF ET AL) 15. April 1997 (1997-04-15) Spalte 6, Zeile 50 - Spalte 7, Zeile 14; Anspruch 1; Beispiele 1,7,8 ---	1-3,5, 11,23 12
X A	US 5 756 634 A (SCHMITT FELIX ET AL) 26. Mai 1998 (1998-05-26) Spalte 10, Zeile 1 - Zeile 10; Ansprüche 1,2,10,11; Tabelle 1 ---	1-3,5,7, 23 12
A	US 4 732 957 A (SCHUSTER PETER ET AL) 22. März 1988 (1988-03-22) Spalte 9, Zeile 22 - Zeile 47; Ansprüche 1,3,5-7 -----	1-3,5,6, 11,23



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

13. April 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

20/04/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Angiolini, D

